

Cavity–Ringdown–Spektroskopie an Wasserstoff–Niederdruckplasmen

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades
an der Mathematisch–Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Augsburg

vorgelegt von
Markus Berger
am 18. Juli 2006

Erster Gutachter: Prof. Dr.–Ing. Kurt Behringer
Zweiter Gutachter: Prof. Dr. Jochen Mannhart
Tag der mündlichen Prüfung : 7. November 2006

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Cavity-Ringdown-Spektroskopie	9
2.1	Absorptionsspektroskopische Methoden	10
2.2	Optische Resonatoren	12
2.2.1	Kirchoff-Fresnel'sche Integralgleichung	12
2.2.2	Konfokaler Resonator	14
2.2.3	Resonanzfrequenzen	15
2.3	Grundlagen der CRDS	16
2.3.1	Absorption in optischen Resonatoren	18
2.3.2	Selbstinterferenz im Resonator	19
2.3.3	Linienprofile	21
2.4	Continuous-wave-CRDS	24
2.5	Gepulste CRDS	26
3	Wasserstoff-Niederdruckplasmen	28
3.1	Grundlegende Eigenschaften und Plasmaparameter	28
3.2	Wichtige Prozesse in Niederdruckplasmen	29
3.3	Ionen des Wasserstoffs	32
3.3.1	H_3^+	32
3.3.2	H^-	37
3.4	Diagnostik von Niederdruckplasmen	40
3.4.1	Langmuir-Sonden	41
3.4.2	Mikrowelleninterferometrie	42
3.4.3	Optische Emissionsspektroskopie und Stoß-Strahlungs- Modelle	44
4	Continuous-wave-CRDS an einer Mikrowellenentladung	46
4.1	Plasmaquelle	46
4.2	CRDS-Aufbau	48
4.2.1	Komponenten der cw-CRDS	48
4.2.2	Steuerung, Datenerfassung und Auswertung	52
4.2.3	Justierung	55
4.2.4	Testmessungen an Wasserdampf	57
4.2.5	Wellenlängenkalibrierung	57
4.2.6	Massenspektrometrie	59
4.3	Ergebnisse	61

4.3.1	Dichtebestimmung	62
4.3.2	Diskussion und Verbesserungsmöglichkeiten	64
5	Gepulste CRDS an einer Quelle für negative Wasserstoffionen	67
5.1	Plasmaquelle und Extraktionssystem	68
5.2	CRDS-Anlage	70
5.2.1	Komponenten der gepulsten CRDS	70
5.2.2	Steuerung, Datenerfassung und Auswertung	71
5.3	Ergebnisse	73
5.3.1	Gemessene Signale und Genauigkeitsbetrachtungen	74
5.3.2	Zeitspuren	76
5.3.3	Parametervariationen	78
5.3.4	Quellenkonditionierung mit Cäsium	79
5.3.5	Bias-Variation	81
5.3.6	Diskussion und Ausblick	82
6	Zusammenfassung	84
	Tabellenverzeichnis	93
	Abbildungsverzeichnis	95

1 Einleitung

Niederdruckplasmen des Wasserstoffs und seiner Isotope spielen in einer Vielzahl von Anwendungen eine wichtige Rolle.

Sie werden z.B. in der Beschichtungs- und Ätztechnik eingesetzt. Dort dient das Plasma als reaktive Phase zur gezielten Modifikation von Oberflächen. Dabei kann das Plasma je nach Prozessart entweder zur Abscheidung von Schichten mit definierten Eigenschaften dienen, oder einen gezielten Abtrag des Oberflächenmaterials herbeiführen. Dabei handelt es sich meistens um relativ kalte und dünne Entladungen [Gri94].

Ein weiteres großes Anwendungsgebiet für Wasserstoffplasmen liegt in der Fusionsforschung. Dort werden heiße, dichte Plasmen untersucht, um in Zukunft eine Energiegewinnung aus der Fusion der Wasserstoffisotope Deuterium und Tritium möglich zu machen [Sch93]. Auch diese magnetisch eingeschlossenen Fusionsplasmen besitzen jedoch dünne, kalte Randschichtbereiche außerhalb des magnetischen Feldkäfigs. Diese Plasmen können durchaus mit jenen in Prozessanlagen vergleichbar sein. Desweiteren treten in der Fusionsforschung Wasserstoffplasmen z.B. in Ionenquellen auf. Die Ionenquellen sind dort ein Bestandteil der Anlagen zur Plasmaheizung.

Dieses häufige Auftreten von Wasserstoff-Niederdruckplasmen in verschiedensten Anwendungsbereichen führt zu einem hohen Bedarf an plasmadiagnostischen Methoden, um die Eigenschaften dieser Plasmen zu untersuchen.

Diese Diagnostikmethoden bilden zusammen mit den theoretischen Modellen der Plasmaphysik die Grundlage für das Verständnis der Plasmen und der in ihnen ablaufenden Prozesse.

Zur Untersuchung der Plasmen steht eine große Anzahl verschiedener Methoden zur Verfügung [AF89], darunter z.B. elektrische Sonden [SS70], interferometrische Verfahren [HW65] oder spektroskopische Verfahren [Fan02], welche auf der Untersuchung des von der Entladung emittierten oder absorbierten Lichtes beruhen.

Emissionsspektroskopische Methoden erlauben für Wasserstoffplasmen einen Zugang zu einer Vielzahl von Messgrößen [Fan02]. Dabei handelt es sich (im Gegensatz zu z.B. Sondenmessungen) um eine nicht-invasive Diagnostik, d.h. die Entladung wird durch die Messung nicht gestört. Die Emissionsspektroskopie ist allerdings darauf angewiesen, daß die zu untersuchenden Plasmateilchen ausreichende Strahlung in einem geeigneten Wellenlängenbereich emittieren.

Ist dies nicht der Fall, so kann u.U. eine Absorptionsspektroskopie durchgeführt werden. Dabei wird das Plasma aktiv mit einem äußeren Lichtfeld durchstrahlt

und nach dem Durchgang eine charakteristische Schwächung des eingestrahnten Lichtes nachgewiesen. Diese Methode eröffnet einen nicht-invasiven Zugang zu einer Vielzahl zusätzlicher Messgrößen, ist aber wiederum auf eine ausreichende Stärke des Absorptionssignals angewiesen.

Daher wird versucht, die Empfindlichkeit der Messanordnungen immer weiter zu steigern, um immer schwächere Absorptionssignale nachweisen zu können [RMK00].

Eine extrem empfindliche Methode zur Messung von Absorptionen stellt dabei die Cavity-Ringdown-Spektroskopie (CRDS) dar [OD88]. Sie basiert auf der Messung der Umlaufgüte eines optischen Resonators, welcher das absorbierende Medium enthält. Dieses Verfahren kann Dämpfungen von bis zu 10^{-9} pro Zentimeter Absorptionsweg nachweisen.

Ziel dieser Arbeit ist es, zwei unterschiedliche Anlagen für CRDS-Messungen zu konzipieren, aufzubauen und ihre Funktionstüchtigkeit nachzuweisen. Die Messmethode soll dabei in zwei verschiedenen Plasmen auf jeweils eine Ionenspezies des Wasserstoffs angewandt werden.

Dabei handelt es sich um den Nachweis des H_3^+ -Molekülions in einer Mikrowellenentladung und um den Nachweis der negativen Ionen H^- und D^- in einer HF-getriebenen Hochleistungsenquelle.

Die Messung am H_3^+ -Molekülion in einer Mikrowellenentladung hat zum Ziel, die Anwendbarkeit der CRDS als quantitative Diagnostik für H_3^+ zu demonstrieren. Eine nicht-invasive quantitative Diagnostik des H_3^+ könnte dann z.B. die Überprüfung von Dissoziationsmodellen für Wasserstoff unterstützen. Auch für Untersuchungen der Wechselwirkung von Wasserstoffplasmen mit Oberflächen ist die Kenntnis der Ionenzusammensetzung im Plasma notwendig. Eine Nachweis des H_3^+ ist zwar z.B. durch den Einsatz geeigneter Massenspektrometer bereits möglich, allerdings ist dabei nur eine Messung des relativen H_3^+ -Anteils möglich. Außerdem handelt es sich hierbei im Gegensatz zum CRDS-Verfahren um eine invasive Messung.

Die CRDS-Anlage an einer Hochleistungsenquelle hat zum Ziel, das Messprinzip der CRDS zur systematischen Messung der H^- -Dichte in einer Quelle für negative Wasserstoff- und Deuteriumionen anzuwenden.

Solche leistungsstarken Quellen zur Erzeugung negativer Wasserstoffionen werden für die Plasmaheizung zukünftiger Fusionsexperimente benötigt. Dabei ist die in der Quelle erzeugte H^- -Dichte zwar ein grundlegender Parameter zur Beschreibung der Quellenleistung, die tatsächliche *Messung* dieser Größe ist jedoch experimentell sehr schwierig. Die Etablierung einer zuverlässigen Messmethode für die absolute Dichte des H^- im Quellenvolumen ist daher im Rahmen der Weiterentwicklung dieser Quellen von großer Bedeutung.

Beide Spezies wurden bereits erfolgreich mit Hilfe der CRDS in Plasmen detektiert [MP02][QKD98]. Im Falle des H_3^+ -Molekülions soll jedoch im Gegensatz zu vorausgegangenen Arbeiten auch die quantitative Auswertbarkeit des Signals überprüft werden. Eine erfolgreiche CRDS-Diagnostik an H^- wäre die erste Übertragung des Messprinzips von Entladungen im Labormaßstab auf Hochleistungsionenquellen.

2 Cavity-Ringdown-Spektroskopie

Zur spektroskopischen Untersuchung von Plasmen oder auch neutralen Gasphasen stehen prinzipiell die Methoden der Emissions- und Absorptionsspektroskopie zur Verfügung. Die Emissionsspektroskopie beruht auf der Zerlegung und Untersuchung des Lichtes, welches von dem zu untersuchenden Medium selbst abgestrahlt wird, des sogenannten Emissionsspektrums. Dieses setzt sich aus der charakteristischen Linien-, Banden- und Kontinuumsstrahlung der angeregten Atome bzw. Moleküle zusammen. Das Spektrum enthält Information über die Besetzung angeregter Zustände im zu untersuchenden Medium, welche durch spontane oder induzierte Emission in einen niedrigeren Energiezustand übergehen. Dabei wird Dipolstrahlung der charakteristischen Frequenz $\nu = \frac{\Delta E}{h}$ frei. Es handelt sich daher um eine passive Methode, d.h. dem zu untersuchenden Medium wird keine zusätzliche äußere Anregung zugeführt. Sie ist nur anwendbar, wenn die betrachtete Spezies Strahlung von ausreichender Intensität emittiert. Darüber hinaus muss die emittierte Strahlung auch experimentell zugänglich sein, d.h. es müssen für die betreffende Wellenlänge geeignete optische Bauteile und Detektoren zur Verfügung stehen. In vielen Fällen fehlt jedoch dem zu untersuchenden Medium die Anregung (z.B. in neutralen Gasphasen), oder die betrachtete Spezies emittiert keine oder nur sehr schwache Dipolstrahlung. Dies ist z.B. für H^- und H_3^+ in Wasserstoffplasmen gegeben.

In solchen Fällen werden *aktive* spektroskopische Methoden benötigt, welche den Spezies von außen Energie zuführen. Dies wird meist durch die Einstrahlung eines geeigneten Lichtfeldes erreicht, welchem das durchstrahlte Medium durch induzierte Absorption die Anregung entnimmt. Danach kann entweder die dadurch erzeugte Sekundäremission detektiert werden (die sog. „laserinduzierte Fluoreszenz“ [Sch95]) oder es kann die Schwächung des anregenden Lichtfeldes nachgewiesen werden. Hierbei ist zu bemerken, daß ein Absorptionsspektrum Informationen über die Besetzung des *unteren* Zustandes eines betrachteten Strahlungsüberganges enthält, was einen prinzipiellen Unterschied zur Emissionsspektroskopie darstellt. Dies erfordert eine ausreichende Dichte des absorbierenden Zustandes entlang des Sichtstrahls. Daher ist man in neutralen Gasphasen oder schwach angeregten Medien auf energetisch tief liegende Zustände (z.B. den Grundzustand) angewiesen.

Die Absorptionsspektroskopie unterliegt der zusätzlichen Einschränkung, daß neben der Detektion der Strahlung auch eine geeignete äußere Anregung zur Verfügung gestellt werden muss. Im Folgenden sollen nun einige Methoden der Absorptionsspektroskopie einander gegenübergestellt werden.

2.1 Absorptionsspektroskopische Methoden

Der Nachweis der Dämpfung des anregenden Lichtfeldes ist das gemeinsame Prinzip aller Methoden der Absorptionsspektroskopie. Der Unterschied zwischen den verschiedenen Methoden liegt in der Art der äußeren Anregung sowie der Nachweiskennlinie.

Durchdringt ein einfallendes Strahlungsfeld der anfänglichen Intensität $I_\lambda(0)$ bei der Wellenlänge λ ein absorbierendes Medium, so wird dieses gemäß dem Gesetz von Lambert–Beer

$$I_\lambda(x) = I_\lambda(0) \cdot e^{-\alpha(\lambda) \cdot x} \quad (2.1)$$

gedämpft (Abb. 2.1, Fall [1]), wobei x den im Medium zurückgelegten Weg und $\alpha(\lambda)$ den Absorptionskoeffizienten des Mediums bei der Wellenlänge λ bezeichnet, d.h. $\frac{1}{\alpha(\lambda)}$ entspricht der Wegstrecke im Medium, nach der die Intensität des Strahlungsfeldes auf den Bruchteil $I_\lambda(0)/e$ gefallen ist. Das Ziel einer absorptionspektroskopischen Messung ist zunächst die möglichst genaue Ermittlung von $\alpha(\lambda)$. Das Integral

$$\tilde{\alpha} = \int_{\text{Linie}} \alpha(\lambda') d\lambda' \quad (2.2)$$

über das gesamte Absorptionssignal ist ein Maß für die Dichte des absorbierenden Zustandes im durchstrahlten Volumen.

Prinzipiell lassen sich beliebig kleine Absorptionskoeffizienten nachweisen, wenn nur die absorbierende Wegstrecke x lang genug ist, z.B. in astrophysikalischen Plasmen. Im Folgenden soll die Diskussion jedoch auf Anordnungen im Labormaßstab beschränkt bleiben. Zur Messung des Absorptionskoeffizienten steht eine Vielzahl verschiedener Methoden zu Verfügung, welche gemäß der zu erwartenden Größenordnung von $\alpha(\lambda)$ und des betreffenden Wellenlängenbereichs ausgewählt werden können. Unter anderem sind dies

- *Weißlichtabsorption:*

Das absorbierende Medium wird breitbandig mit dem Spektrum eines geeigneten Kontinuumstrahlers durchleuchtet, um nach dem Durchgang die selektive Dämpfung einzelner Wellenlängen an einem Spektrographen nachzuweisen. Bei Bedarf kann die effektive Absorptionslänge durch einen Mehrfachdurchgang durch das Medium gesteigert werden. Diese relativ einfache Methode liefert abhängig von den Experimentparametern Ergebnisse bis in den Bereich $\alpha = 10^{-3} - 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ [BDS77].

- *TDLAS (Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy):*

Bei der TDLAS wird die schmalbandige Emission einer thermisch und elektrisch stabilisierten Laserdiode in das zu untersuchende Medium eingestrahlt, deren Emissionswellenlänge durch eine geeignete Anordnung (z.B. durch einen externen Rückkopplungsresonator) über einen bestimmten Bereich variiert werden kann. Die transmittierte Strahlung wird nach Einfach- oder Mehrfachdurchgang durch das Medium detektiert, und zeigt die dem Medium korrespondierenden Absorptionssignale bis in einen Bereich von

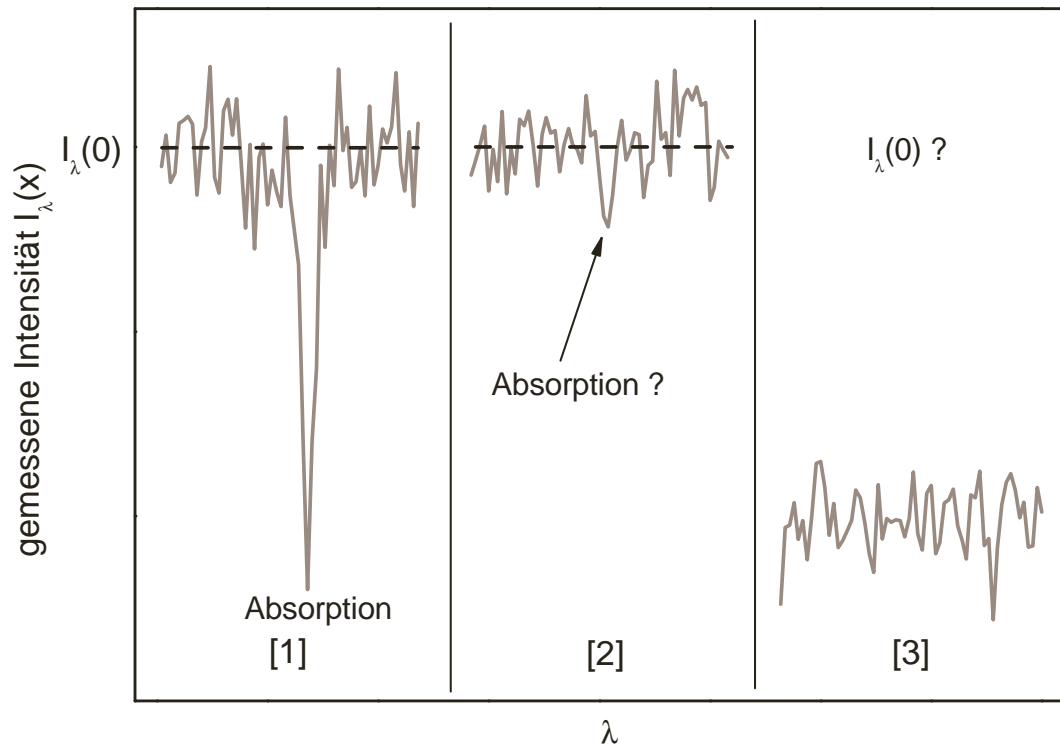


Abbildung 2.1: Am Detektor gemessene Intensität nach einer Linienabsorption [1], einer Linienabsorption an der Nachweisgrenze der Anordnung [2] und einer breitbandigen Absorption [3].

$\alpha = 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ [LHS⁺05][MP02], da die Laserdioden ein relativ geringes Intensitätsrauschen aufweisen.

Trotzdem ist die Empfindlichkeit aller Methoden, welche auf die Messung absoluter oder relativer Intensitäten angewiesen sind, grundsätzlich durch das Rauschen von Lichtquelle und Detektor begrenzt: Ist die Absorption schwach, also $e^{-\alpha(\lambda) \cdot x} \approx 1$ und somit $I_\lambda(x) \approx I_\lambda(0)$, so stellt sich die Frage, bis zu welcher Genauigkeit sich die Intensitäten $I_\lambda(x)$ und $I_\lambda(0)$ messen und reproduzieren lassen. Erreicht $e^{-\alpha(\lambda) \cdot x}$ die Größenordnung des Fehlers in $I_\lambda(x)/I_\lambda(0)$, welcher durch das Rauschen der verwendeten Lichtquellen und Detektoren zustande kommt, so kann das Absorptionssignal nicht mehr vom Untergrund $I_\lambda(0)$ unterschieden werden (Abb. 2.1, Fall [2]). Besonders kritisch ist dies bei breitbandigen Absorptionen, wenn der Untergrund $I_\lambda(0)$ nicht simultan erfasst werden kann (Abb. 2.1, Fall [3]). In diesem Fall ist man auf eine zusätzliche Leermessung angewiesen, was experimentell nicht immer möglich ist.

Die durch das Intensitätsrauschen der beteiligten Komponenten bedingte Nachweisgrenze klassischer Absorptionsmethoden kann durch die Cavity-Ringdown-Spektroskopie (CRDS) überwunden werden. Bei dieser Methode der Absorptionsspektroskopie wird die Messung von Intensitäten durch die Messung von *Zeiten*

ersetzt, indem das Abklingverhalten eines optischen Resonators untersucht wird. Auf die grundlegenden Eigenschaften optischer Resonatoren soll im Folgenden kurz eingegangen werden.

2.2 Optische Resonatoren

2.2.1 Kirchhoff–Fresnel’sche Integralgleichung

Ein optischer Resonator ist eine Anordnung von reflektierenden Oberflächen, in welcher durch innere oder äußere Anregung ein Lichtfeld aufrechterhalten werden kann. Da für das Lichtfeld im Resonator Randbedingungen an den Oberflächen einzuhalten sind, stellt sich die Frage, welche stationären Feldverteilungen (*Resonatormoden*) in Abhängigkeit von der Resonatorgeometrie erlaubt sind. Ist ein Resonator durch das reflektierende Medium komplett nach außen abgeschlossen, so daß das Strahlungsfeld keine Beugungsverluste erleidet, so spricht man von einem *Hohlraumresonator*, in welchem als stationäre Feldverteilung eine beliebige Überlagerung ebener Wellen zugelassen ist, solange die Einzelwellen mit den Randbedingungen verträglich sind. Optische Resonatoren sind jedoch meist offen, d.h. daß Strahlung aus dem Resonator entweichen kann und nur bestimmte bevorzugte Raumrichtungen stabile Resonatormoden aufweisen können, deren Lichtfeld außerdem Beugungsverlusten unterliegt [Dem93]. In diesen Moden kann jedoch eine hohe Strahlungsintensität erreicht werden, da sich aufgrund der diskreten Modenstruktur das Lichtfeld nicht auf andere Moden umverteilen kann. Dies ist in vielen optischen Anwendungen erwünscht, z.B. für die Anwendung in Lasern. Ziel der Resonatortheorie ist es nun, für eine gegebene Geometrie die erlaubten stationären Feldverteilungen im Orts- und Frequenzraum zu ermitteln. Das ist im Allgemeinen nur näherungsweise möglich, da selbst vereinfachte Stationaritätsbedingungen keine analytische Lösung besitzen.

Für die typische Geometrie der in der CRDS benutzten Resonatoren sollen nun die grundlegenden Überlegungen skizziert werden.

Als Ausgangspunkt wählt man einen ebenen Spiegelresonator, welcher durch zwei planparallele Spiegel des Durchmessers $2a$ im Abstand d gebildet wird, wobei $d \gg a$. Unter einer „stationären“ Feldverteilung ist in diesem Fall zu verstehen, daß das Lichtfeld bei seinem Umlauf im Resonator durch Verlustprozesse wie Beugung, Streuung, Transmission, etc. an Absolutintensität verlieren kann, sich die Form der Feldverteilung jedoch in jedem Umlauf reproduziert. Es ist unmittelbar einsichtig, daß jegliche Strahlung den Resonator nach wenigen Umläufen wieder verläßt, welche sich nicht senkrecht zu den Spiegelebenen ausbreitet. Fällt eine ebene Welle der Wellenlänge λ auf einen der Spiegel, so entwirft der Spiegel als Reflexion ein Beugungsbild, welches identisch zur Transmission durch eine Blende des Durchmessers $2a$ ist (Prinzip von Babinet [KF86]). Das Hin- und Herlaufen der Strahlung entspricht also einer wiederholten Beugung an äquidistanten Blenden des Durchmessers $2a$ und des Abstandes d , wie in Abb. 2.2 dargestellt.

2.2.2 Konfokaler Resonator

In der Praxis sind aufgrund der sehr stabilen Resonanz oft sphärisch gekrümmte Spiegel mit einem endlichen Krümmungsradius r im Einsatz. Haben diese beide den selben Krümmungsradius r , so heißt der Resonator *symmetrisch*. Ist darüber hinaus ihr Abstand $d = r$, so spricht man von einem *konfokalen* Resonator. Gilt wie in Abschnitt 2.2.1 vorausgesetzt $d \gg a$, so ist in (2.3) in guter Näherung $\rho = d$ und $\cos \theta = 1$. Für diesen Fall läßt sich die Integralgleichung für die Forderung aus (2.4) analytisch lösen [Lot68]. Legt man den Koordinatenursprung in die Mitte des Resonators, so erhält man für rechteckige Spiegel

$$A_{m,l}(x, y, z) = C \cdot H_m(\hat{x}) H_l(\hat{y}) \cdot e^{-(\hat{x}^2 + \hat{y}^2)/4} e^{i\Phi(x,y,z)}. \quad (2.5)$$

Diese Feldverteilungen werden oft als TEM_{ml} -Moden des Resonators bezeichnet. Dabei sind H_m und H_l die Hermiteschen Polynome m -ter bzw. l -ter Ordnung. \hat{x} und \hat{y} sind normierte Koordinaten mit $\hat{x} = \sqrt{2}x/w$ und $\hat{y} = \sqrt{2}y/w$, wobei

$$w(z) = \sqrt{\frac{\lambda d}{2\pi} \left[1 + \left(\frac{2z}{d} \right)^2 \right]} \quad (2.6)$$

die radiale Amplitudenverteilung angibt. Die Phase Φ ist mit $\xi = 2z/d$ gegeben durch

$$\Phi(x, y, z) = \frac{2\pi}{\lambda} \left[\frac{r}{2}(1 + \xi^2) + \frac{(x^2 + y^2)\xi}{r(1 + \xi^2)} \right] - (1 + m + l) \left(\frac{\pi}{2} - \arctan \frac{1 - \xi}{1 + \xi} \right). \quad (2.7)$$

Da die Hermiteschen Polynome m -ter und l -ter Ordnung jeweils m bzw. l Nullstellen haben, geben diese sogenannten *transversalen Modenindices* die Anzahl der Knoten des elektrischen Feldes in x - und y -Richtung an. Es gibt auch einen longitudinalen Modenindex q , welcher eine große Ganzzahl von der Größenordnung d/λ ist und die Anzahl der Feldknoten entlang der Resonatorachse angibt. Eine longitudinale Mode ist immer dann möglich, wenn der Spiegelabstand d ein Vielfaches von $\lambda/2$ beträgt, so daß die Feldverteilung mit den Randbedingungen auf den Spiegeloberflächen verträglich ist. Der Index q wird in der Notation unterdrückt, wenn die Anzahl der Feldknoten entlang der Resonatorachse keine Rolle spielt.

Für die Hermiteschen Polynome nullter Ordnung gilt $H_{m=l=0} = 1$, daher ist die Intensität $I(x, y, z) = |A(x, y, z)|^2$ für $m = l = 0$ gerade

$$I_{00}(x, y, z) = I_0 \cdot e^{-\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2}}. \quad (2.8)$$

Die Intensität dieser sogenannten *longitudinalen Fundamentalmoden* („ TEM_{00} -Moden“) ist also radial Gauß-förmig verteilt, wobei w den Abstand von der Resonatorachse angibt, an welchem $I = I_0/e$ gilt. Wie aus (2.6) ersichtlich, wird

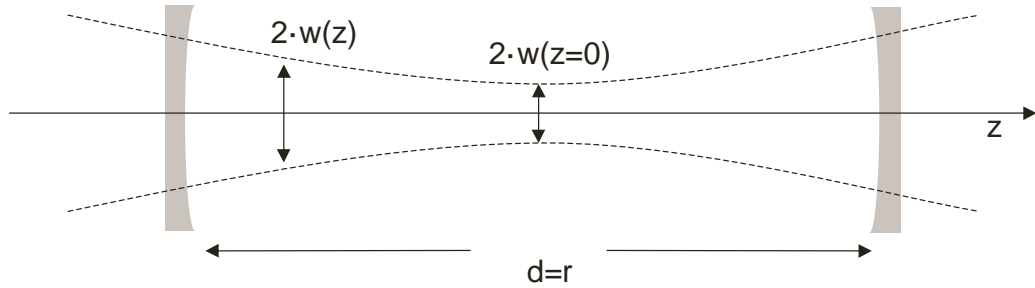


Abbildung 2.3: TEM_{00} -Intensitätsverteilung im konfokalen Resonator.

dieser Abstand minimal für $z = 0$ mit dem Wert

$$w_0 = \sqrt{\frac{\lambda d}{2\pi}}, \quad (2.9)$$

der sogenannten *Strahltaille* (siehe Abb. 2.3).

2.2.3 Resonanzfrequenzen

Da die stationären Feldverteilungen im Resonator stehende Wellen ausbilden, muß gefordert werden, daß das Feld auf den Spiegeloberflächen Knoten besitzt. Setzt man diese Randbedingung in (2.7) ein, so erhält man für die Resonanzfrequenzen eines symmetrischen (nicht notwendigerweise konfokalen) Resonators mit rechteckigen Spiegeln die Bedingung [HW92] [Dem93]

$$\nu_{mlq} = \frac{c}{2d} \left[q + \frac{m+n+1}{\pi} \arccos \left(1 - \frac{d}{r} \right) \right]. \quad (2.10)$$

Für runde Spiegel erhält man

$$\nu_{plq} = \frac{c}{2d} \left[q + \frac{2p+l+1}{\pi} \arccos \left(1 - \frac{d}{r} \right) \right], \quad (2.11)$$

wobei p und l in diesem Fall die Anzahl der radialen bzw. azimuthalen Feldknoten um die Resonatorachse angibt.

Schwingen in einem Resonator verschiedene Moden gleichzeitig an, so modulieren sich diese mit der Differenz ihrer Frequenzen gegenseitig. Diese Schwebungen („modebeating“) können zu sehr komplizierten zeitlichen Verläufen der aus dem Resonator transmittierten Intensitäten führen, so daß man dieses Verhalten in der Praxis im Allgemeinen unterdrücken möchte. Dies kann durch das Einführen geeigneter Modenblenden geschehen, welche z.B. das Anschwingen transversaler Moden unterdrücken, indem der Strahlengang in der Resonatormitte auf die TEM_{00} -Strahltaille begrenzt wird. Im Fall des konfokalen Resonators ($d = r$)

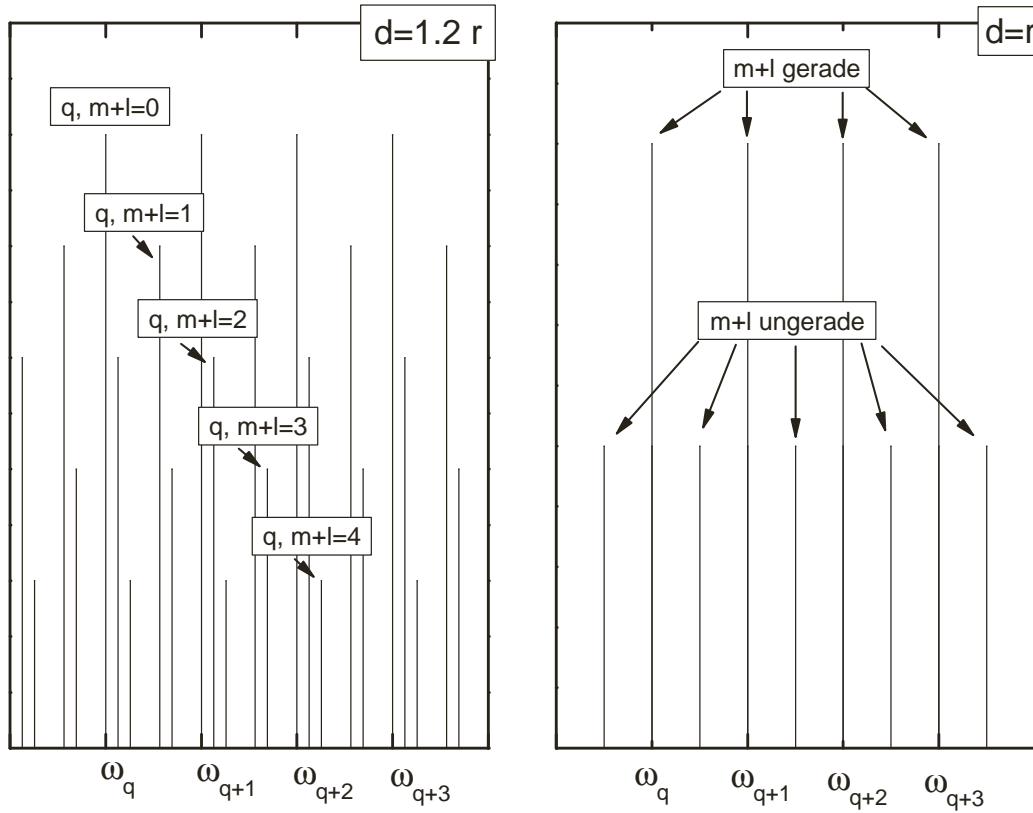


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Modenstruktur im symmetrischen ($d \neq r$) und konfokalen Resonator ($d = r$) für rechteckige Spiegel. (Die Ordinatenachse dient nur der Darstellung. Die Höhe der Resonanzen ist aus Gründen der Übersichtlichkeit willkürlich unterschiedlich gewählt).

nimmt der \arccos -Term genau den Wert $\pi/2$ an. Dies führt zu einer Entartung der longitudinalen mit den transversalen Resonanzfrequenzen, wobei die Resonanzen mit geradem/ungeradem $m + l$ auf den gleichen Frequenzen zu liegen kommen (Abb. 2.4).

2.3 Grundlagen der CRDS

Die CRDS beruht auf der Idee, die Abklingzeit eines optischen Resonators aus zwei hochreflektiven Spiegeln zu messen. Die Methode wurde erstmals 1988 von O’Keefe und Deacon vorgestellt [OD88]. Sie entstand aus der Notwendigkeit heraus, die Reflektivität R von Spezialspiegeln mit $R \simeq 1$ zu messen, da die einfache Messung der eingestrahlten und reflektierten Intensitäten für sehr gute Reflexion wiederum durch das Rauschen von Quelle und Detektor in ihrer Genauigkeit begrenzt wird. Bildet man jedoch aus einem Paar solcher Spiegel einen optischen Resonator der Länge d und regt diesen durch z.B. einen Laserpuls an, so zerfällt

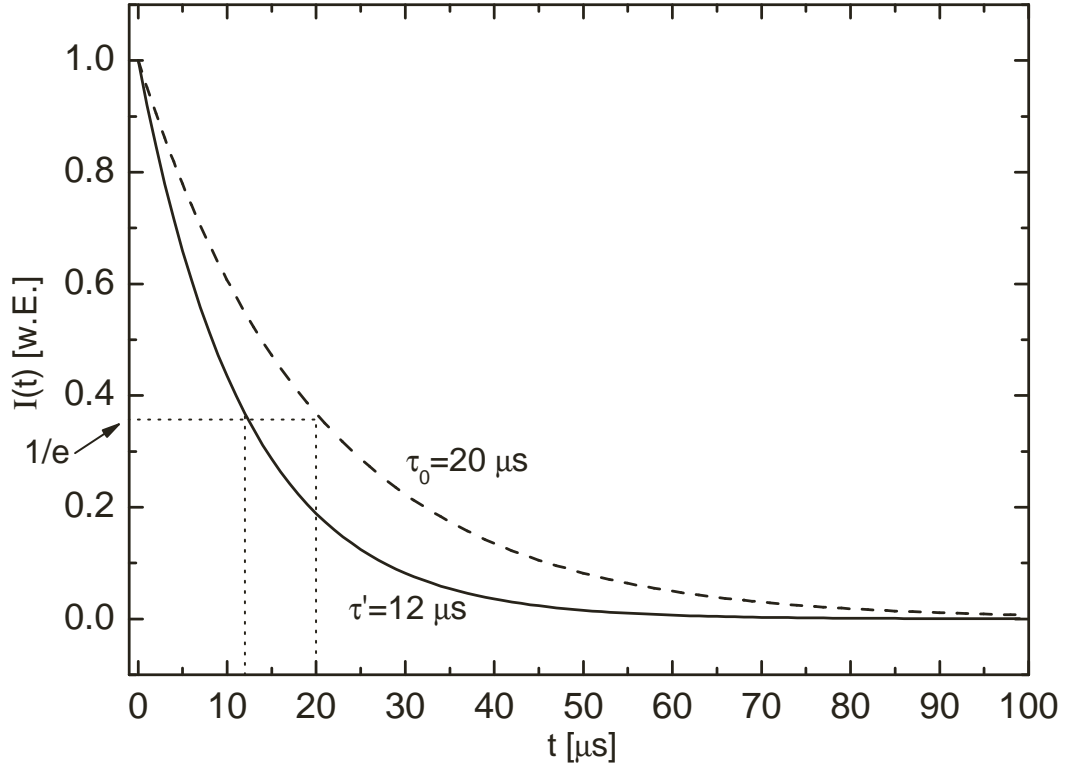


Abbildung 2.5: Ringdown-Signale (schematisch) : Resonator mit $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$ und mit zusätzlicher Absorption ($\tau' = 12 \mu\text{s}$, entspricht ungefähr $\alpha = 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ für $d/l_m = 1$).

das in ihm gespeicherte Lichtfeld exponentiell mit der charakteristischen Zeitkonstanten

$$\tau_0 = \frac{d}{c(1 - R)} , \quad (2.12)$$

welche eine extrem exakte Messung von R zulässt. Dabei bezeichnet c die Lichtgeschwindigkeit. Die Größe τ_0 beschreibt den Umlaufverlust des Lichtes, welcher durch die nicht-idealen Spiegel erzeugt wird. Das System reagiert allerdings auch sehr empfindlich auf zusätzliche Dämpfungen des Lichtfeldes durch ein absorbierendes Medium zwischen des Resonatorspiegeln, was sich in einer verkleinerten Abklingzeit τ' widerspiegelt.

Über den Zusammenhang

$$\alpha = \frac{1}{c} \cdot \frac{d}{l_m} \cdot \left(\frac{1}{\tau'} - \frac{1}{\tau_0} \right) \quad (2.13)$$

lassen sich so extrem kleine Absorptionen nachweisen. Dabei ist d/l_m das Verhältnis von Resonatorlänge zur Länge des absorbierenden Mediums. Somit wurde mit der Idee zur Messung von R gleichzeitig eine Methode zur Absorptionsspektroskopie entwickelt. Diese erweitert den Empfindlichkeitsbereich der Absorptionsspektroskopie durch die Messung von *Zeiten* anstatt von Intensitäten um mehrere Größenordnungen. Der begrenzende Faktor des Quelle-Detektor-Rauschens ist

damit umgangen. Abbildung 2.5 zeigt theoretische Ringdown-Signale für einen Resonator mit $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$ im leeren Zustand und mit zusätzlicher Absorption ($\tau' = 12 \mu\text{s}$). Die gewählten Zeitkonstanten entsprechen einer Absorption des Mediums von $\alpha \simeq 1 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ für den Fall $d/l_m = 1$.

Die Nachweisgrenze hin zu kleinen Absorptionen ist durch die kleinste Änderung $\Delta\tau$ der Abklingzeit gegeben, welche von der intrinsischen Abklingzeit τ_0 noch *wiederholbar* unterschieden werden kann.

Für die Nachweisgrenze α_{min} gilt dann:

$$\alpha_{min} = \frac{1}{c} \cdot \frac{d}{l_m} \cdot \left(\frac{1}{\tau_0 + \Delta\tau} - \frac{1}{\tau_0} \right) = \frac{1}{c} \cdot \frac{d}{l_m} \cdot \frac{\Delta\tau}{\tau_0(\tau_0 + \Delta\tau)} \simeq \frac{1}{c} \cdot \frac{d}{l_m} \cdot \frac{\Delta\tau}{\tau_0^2}. \quad (2.14)$$

Man erkennt, daß die Nachweisgrenze quadratisch mit τ_0 sinkt. Eine Optimierung der Spiegeloberflächen steigert somit die Empfindlichkeit des Aufbaus drastisch. $\Delta\tau$ hängt von der statistischen Streuung der gemessenen Abklingkonstanten ab. Diese ist stets vorhanden, da die Reproduzierbarkeit der Messung durch die zeitliche Stabilität der Laserquelle und die thermische Drift der Anordnung begrenzt ist. Außerdem trägt die messtechnische Aufbereitung des gemessenen Signals (Rauschen, numerische Fehler der Auswertung, ...) zur Streuung bei. Das Verhältnis d/l_m ist meist durch den experimentellen Aufbau vorgegeben. In der Praxis kann allerdings $\Delta\tau$ innerhalb eines gewissen Rahmens durch messtechnische und mechanische Maßnahmen optimiert werden, während sich die Reflektivität der Spiegeloberflächen kaum aktiv kontrollieren läßt. Unter idealen Laborbedingungen erreicht man α_{min} bis zu 10^{-9} cm^{-1} .

Warum und unter welchen Bedingungen die grundlegenden Zusammenhänge (2.12) und (2.13) gelten, soll im Folgenden erläutert werden.

2.3.1 Absorption in optischen Resonatoren

Wird ein Laserpuls coaxial durch einen der Resonatorspiegel in einen leeren Resonator der Länge d eingebracht, so wird dieser bei hinreichend exakter Justierung der Anordnung Umläufe im Resonator in der Zeit $t_u = \frac{2d}{c}$ ausführen. Der Puls soll nicht mit sich selbst interferieren, also kürzer als die Umlaufzeit sein ($t_p < t_u$). Haben die Spiegel eine Reflektivität R , so hat ein Puls der anfänglichen Intensität I_0 nach einem vollen Umlauf die verbleibende Intensität $I(t_u) = R^2 I_0$. Nach n Umläufen lautet der Ausdruck entsprechend

$$I(n \cdot t_u) = I_0 \cdot R^{2n} = I_0 \cdot e^{2n \cdot \ln R}. \quad (2.15)$$

Für $R \simeq 1$ gilt in guter Näherung $\ln R = -(1 - R)$, und somit

$$I(n \cdot t_u) = I_0 \cdot e^{-n \cdot 2(1-R)} \equiv I_0 \cdot e^{-n \cdot L_0} \quad (2.16)$$

mit dem Umlaufverlust-Koeffizienten $L_0 = 2(1 - R)$. Berücksichtigt man außerdem $n = t/t_u$ gilt schließlich

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-t \cdot \frac{c(1-R)}{d}} \equiv I_0 \cdot e^{-t/\tau_0}. \quad (2.17)$$

Dies definiert die intrinsische Abklingzeit τ_0 (siehe (2.12)). Bringt man hinter dem zweiten Spiegel einen empfindlichen Detektor an, so registriert dieser ein schwaches transmittiertes Signal proportional zu $I(t)$, dessen zeitlicher Verlauf durch (2.17) gegeben ist.

Wird der Resonator mit einem absorbierenden Medium der Länge l_m gefüllt, welches gemäß des Gesetzes von Lambert–Beer (2.1) das Lichtfeld schwächt, so erfährt das Licht pro Umlauf eine zusätzliche Dämpfung um den Bruchteil $1 - e^{-2\alpha l_m} \simeq 2\alpha l_m$. Die Näherung für schwache Absorptionen ist gerechtfertigt, da genau dieser Fall das Einsatzgebiet der CRDS darstellt. Damit nimmt der Umlaufverlust–Koeffizient die Form

$$L' = 2[(1 - R) + \alpha l_m] \quad (2.18)$$

an. Analog zur Überlegung für τ_0 erhält man nun durch Einsetzen von L' in (2.16) die Abklingzeit mit zusätzlicher Absorption als

$$\tau' = \frac{d}{c[(1 - R) + \alpha l_m]}. \quad (2.19)$$

Umstellen nach α liefert zusammen mit (2.12) schliesslich

$$\alpha = \frac{1}{c} \cdot \frac{d}{l_m} \cdot \left(\frac{1}{\tau'} - \frac{1}{\tau_0} \right). \quad (2.20)$$

Trägt man also $\frac{\text{konst.}}{\tau'}$ auf, erhält man direkt das Absorptionsspektrum des Mediums im Resonator über dem Untergrund $\frac{\text{konst.}}{\tau_0}$. Dieses grundlegende Ergebnis wurde allerdings unter der Annahme erzielt, daß der Puls im Resonator nicht mit sich selbst interferiert. Dies erfordert einen sehr kurzen Puls ($t_p < t_u$), was zwangsläufig die spektrale Auflösung der Anordnung beeinträchtigt, da der Puls im Frequenzraum entsprechend breit wird ($d\nu \sim 1/dt$). Möchte man den Resonator schmalbandig anregen (z.B. mit einem geeigneten Dauerstrichlaser) oder übersteigt die Pulslänge aus einem anderen Grund die Umlaufzeit des Lichtes im Resonator, so muss die Selbstinterferenz des Lichtes im Resonator berücksichtigt werden.

2.3.2 Selbstinterferenz im Resonator

Im Abschnitt 2.2 wurden Eigenschaften optischer Resonatoren wie Modenstrukturen und Resonanzfrequenzen durch Überlegungen der Beugungstheorie hergeleitet. Dabei wurde die Anregung des Lichtfeldes im Resonator als von außen gegeben hingenommen. Es ist allerdings unmittelbar einsichtig, daß die zeitliche und spektrale Form der äußeren Anregung die Antwort des Resonators auf diese Anregung beeinflussen wird: Unterschreitet die Länge des anregenden Pulses die Umlaufzeit des Lichtes im Resonator, so kommt es zu keiner Selbstinterferenz, da sich zu keiner Zeit Pulsteile mit gleicher Ausbreitungsrichtung im Resonator überlagern. Erreicht die Länge der äußeren Anregung die Umlauflänge oder

übersteigt diese, so wird der Resonator Transmissionseigenschaften ausprägen, welche von der Selbstinterferenz des Lichtes bestimmt werden. Diese qualitativen Überlegungen sollen im Folgenden quantifiziert werden.

Wird Licht als stehende Welle in einem optischen Resonator gehalten, so muß das Lichtfeld an den Spiegeloberflächen zu jeder Zeit die Bedingung $\vec{E}_{\parallel} = \vec{0}$ erfüllen [Mes01]. Für einen Resonator mit Spiegelabstand d und Krümmungsradius der Spiegel r führt das auf eine Bedingung der Form von (2.10) für die Frequenzen der Wellen, welche im Resonator existieren können. Dabei seien die transversalen Modenindices $m = l = 0$, stattdessen wird der longitudinale Modenindex notiert. Der Frequenzabstand zweier benachbarter longitudinaler Grundmoden ist dann

$$\Delta\nu = \nu_{q+1} - \nu_q = \frac{c}{2d}. \quad (2.21)$$

Der Resonator ist also frequenzselektiv mit dem sogenannten freien Spektralbereich $\Delta\nu$ (FSR, „free spectral range“). Dies führt für einen Resonator der Länge $d = 1$ m auf einen Wert von $\Delta\nu \simeq 150$ MHz.

Diesen charakteristischen Frequenzabstand findet man ebenfalls wieder, wenn man die Anregung eines Resonators mit einem Puls von variabler Länge t_p entlang der Resonatorachse z betrachtet: Bringt man einen Laserpuls der Form

$$E(z, t) = \mathcal{E}(z, t) e^{i(kz - \omega t)} \quad (2.22)$$

durch einen der Spiegel in einen leeren Resonator ein, so überlagern sich am Ausgangsspiegel Pulsanteile, welche alle einmal durch den Eintrittsspiegel transmittiert und dann mehrfach im Resonator reflektiert wurden. Diese haben die entsprechende Anzahl von Umlaufverlusten mit dem Faktor $e^{-L_0/2}$ erlitten und überlagern sich mit ihrer momentanen Phase. In (2.23) tragen die Transmissionfaktoren und Dämpfungsterme für die Feldamplitude jeweils den zusätzlichen Exponenten $\frac{1}{2}$, da diese Größen für die Intensität, also für $|E|^2$ definiert wurden. Die Summe der überlagerten Pulsanteile bestimmt die anfängliche Intensität des Lichtes im Resonator, welche insgesamt mit der Zeitkonstanten τ_0 (siehe (2.17)) abklingt [ZZ95]:

$$\begin{aligned} E(t_0 + nt_u) &= \sqrt{T} \cdot \exp \left[-n \left(\frac{1}{2} t_u / \tau_0 + i\omega t_u \right) \right] \\ &\times \{ \mathcal{E}(0 \cdot 2d, t) \cdot \exp[-0 \cdot L_0/2] \cdot \exp[i\omega \cdot 0 \cdot t_u] + \\ &\quad \mathcal{E}(1 \cdot 2d, t) \cdot \exp[-1 \cdot L_0/2] \cdot \exp[i\omega \cdot 1 \cdot t_u] + \\ &\quad \mathcal{E}(2 \cdot 2d, t) \cdot \exp[-2 \cdot L_0/2] \cdot \exp[i\omega \cdot 2 \cdot t_u] + \dots \} \\ &= \sqrt{T} \cdot \exp \left[-n \left(\frac{1}{2} t_u / \tau_0 + i\omega t_u \right) \right] \\ &\times \left\{ \sum_r \mathcal{E}(2rd, t) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} r L_0 \right] \cdot \exp[i\omega r t_u] \right\}. \end{aligned} \quad (2.23)$$

Das Verhältnis der Pulslänge zu Umlauflänge im Resonator bestimmt die Anzahl der Überlagerungen und damit die Anzahl der Glieder in der Summation über r . Die Intensität der *hinter* dem Austrittsspiegel gemessenen Strahlung ist durch das Betragsquadrat des Ausdruckes 2.23 gegeben. Für einen Rechteckpuls der Dauer t_p

$$E_0(t) = \begin{cases} \mathcal{E}_0, & \text{für } 0 \leq t \leq t_p \\ 0, & \text{für } t > t_p \end{cases} \quad (2.24)$$

ist diese

$$I = E \cdot E^* = I_0 \cdot e^{-t/\tau_0} \times T^2 \underbrace{\left| \sum_{r=0} \exp \left[-\frac{1}{2} r L_0 \right] \cdot \exp[i\omega r t_u] \right|^2}_{\equiv \Gamma(\omega)}. \quad (2.25)$$

Der frequenzabhängige Interferenzterm definiert die Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$ des Resonators. Die Teilpulse interferieren konstruktiv, wenn $\omega t_u = 2\pi$, also mit der Periode des freien Spektralabstandes (in diesem Fall in Einheiten der Kreisfrequenz):

$$\Delta\omega = 2\pi d\nu = \frac{\pi c}{d}. \quad (2.26)$$

Die Transmissionsfunktion läßt sich für gegebene Verhältnisse t_p/t_u numerisch auswerten. Abb. 2.6 zeigt $\Gamma(\omega)/T^2$ für das Beispiel dreier Pulse, wobei der erste eine Länge $t_p < t_u$ besitzt, der zweite die Länge $t_p = 2t_u$. Der dritte Puls sei unendlich lange ausgedehnt, $t_p \rightarrow \infty$. Man sieht sehr anschaulich, daß der Resonator im Fall des nicht-selbstinterferierenden Pulses keine Wellenlängenselektivität zeigt und der Puls mit der numerischen Transmission T^2 transmittiert wird. Beginnt der Puls mit sich selbst zu interferieren, so bilden sich Resonanzen, in denen bis zu einigen Prozent der Eingangsleistung transmittiert werden können, obwohl T^2 für gute Ringdown-Spiegel von der Größenordnung 10^{-8} ist. Dies wird in der Resonanz durch das „Aufladen“ des Resonators mit Strahlung möglich. Gleichzeitig fällt mit steigender Pulslänge die Transmission des Resonators außerhalb der Resonanzen auf sehr geringe Werte.

2.3.3 Linienprofile

Möchte man beurteilen, welche Information die gemessenen Abklingkonstanten für einen gegebenen CRDS-Aufbau enthalten, so müssen die Linienprofile von Anregung und Absorption, sowie die Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$ berücksichtigt werden. Im Folgenden sollen die spektralen Halbwertsbreiten der Absorption und des anregenden Laserpulses mit $\delta\alpha$ bzw. δI bezeichnet werden. δI ist typisch für den jeweils verwendeten Laser. Die spektrale Breite des Absorptionssignals $\delta\alpha$ hängt für eine gegebene Probe sowohl von der Lebensdauer des absorbierenden

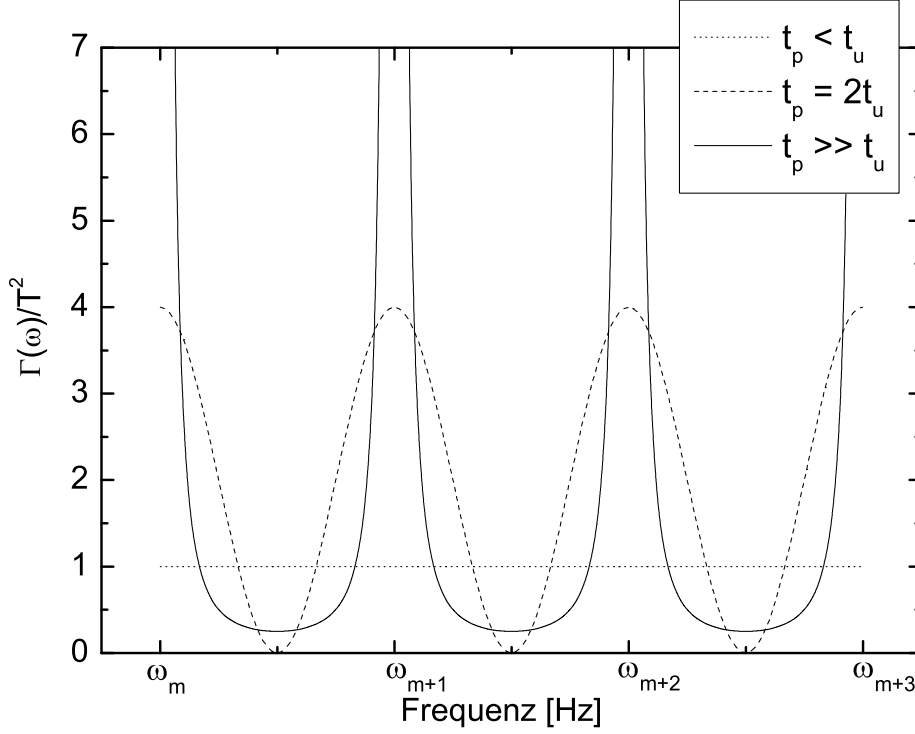


Abbildung 2.6: Transmissionsfunktion eines Resonators in Abhängigkeit von der Länge t_p des eingestrahlten Laserpulses im Vergleich zur Umlaufzeit t_u .

Molekül- oder Atomzustandes als auch von der Geschwindigkeitsverteilung der Teilchen und damit von der Gastemperatur ab. Es werden Laserpulse mit $t_p \gg t_u$ betrachtet, so daß $\Gamma(\omega)$ starke Resonanzen mit dem spektralen Abstand $\Delta\omega$ aufweist (siehe (2.25)). Es soll nun für die wichtigsten Fälle diskutiert werden, ob und mit welcher Qualität ein Absorptionssignal $\alpha(\omega)$ gemessen werden kann. Für die Darstellung von Anregungs- und Absorptionsprofil wurde eine Gaußförmige spektrale Verteilung angenommen.

- $\delta\alpha \gg \delta I > \Delta\omega$ (Abb. 2.7):

Da die spektrale Breite des Laserpulses größer als der longitudinale Modenabstand ist, nimmt der Resonator in jedem Fall Energie aus dem angebotenen Anregungspuls auf, wobei mehrere Resonatormoden anschwingen. Das entsprechende Anregungsspektrum ergibt sich aus dem Produkt $\Gamma \cdot I$ und ist in Abb. 2.7 zusätzlich dargestellt. Das transmittierte Signal kann Schwebungen aufweisen, da sich Strahlung aus Resonatormoden mit leicht verschiedenen Frequenzen hinter dem Austrittsspiegel überlagert. Die Abklingkonstanten der einzelnen transmittierten Moden sind in guter Näherung identisch, da sich das Absorptionsprofil über den Frequenzbereich der

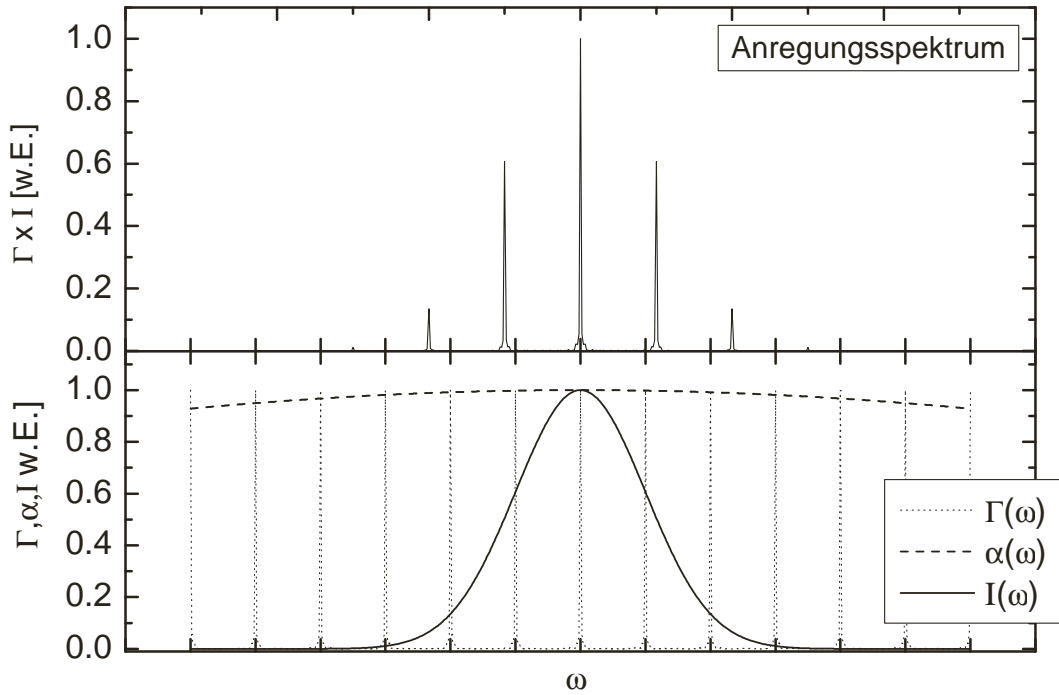


Abbildung 2.7: Schematische Gegenüberstellung der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$, des Anregungsprofils $I(\omega)$ und des Absorptionsprofils $\alpha(\omega)$ für den Fall $\delta\alpha \gg \delta I > \Delta\omega$. Darüber: resultierendes Anregungsprofil.

gesamten Anregung kaum ändert. Daher kann (unter Berücksichtigung der eventuellen Schwebungen) eine quantitative Aussage über die Absorption $\alpha(\omega)$ gewonnen werden. Ist der Laserpuls in geeigneter Weise durchstimmbar, so kann die gesamte Absorptionslinie abgetastet werden.

- $\delta\alpha \gg \Delta\omega > \delta I$ (Abb. 2.8):

In diesem Fall unterschreitet die spektrale Breite der Anregung den Abstand zwischen den Resonanzen der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$. Der Resonator transmittiert außerhalb der Resonanzen praktisch keine Leistung, und es ist keine Messung möglich. Dies macht in der Praxis eine Modenabstimmung des Resonators notwendig, meist durch Modulation des Spiegelabstandes (siehe Abschnitt 2.4). Dadurch gerät der Laserpuls periodisch in Resonanz zur Transmissionsfunktion und ein Ringdown-Signal kann gemessen werden, solange die Modulationsfrequenz des Spiegelabstandes klein gegen $1/\tau$ ist. Dann können die Positionen der Resonanzfrequenzen während des Abklingvorganges als statisch angenommen werden. Da nur maximal eine longitudinale Mode anschwingt, ist das transmittierte Ringdown-Signal frei von Schwebungen. Auch in diesem Fall kann durch das Durchstimmen des Lasers ein quantitativ richtiges Absorptionsspektrum des Mediums im Resonator aufgenommen werden.

- $\delta I > \Delta\omega > \delta\alpha$ (Abb. 2.9, oben):

Liegt die spektrale Breite des Absorptionssignals unterhalb des Modenab-

standes $\Delta\omega$, so wird die Absorptionslinie im Spektrum fehlen, wenn sie zwischen die Resonanzen fällt. Auch eine Modulation des Spiegelabstandes verspricht im dargestellten Fall keine Abhilfe, da stets mehrere Moden gleichzeitig anschwingen, von denen die meisten den Detektor ungedämpft erreichen, so daß sich das Absorptionssignal nur schlecht vom Untergrund abhebt. In diesem Fall sind quantitative Aussagen nur schwer zu erhalten.

- $\delta\alpha \approx \delta I > \Delta\omega$ (Abb. 2.9, unten):
Der hier dargestellte Fall führt ähnlich wie in Abb. 2.7 stets zu transmittierten Ringdown-Signalen, allerdings sind die spektralen Breiten von Anregung und Absorption ähnlich, so daß sich am Detektor Ringdown-Signale unterschiedlicher Dämpfung und damit unterschiedlicher Abklingkonstanten überlagern. In diesem Fall muss eine entsprechende Überlagerung verschiedener Abklingkonstanten an das gemessene Signal angefügt werden, was nicht immer eindeutig möglich ist. Außerdem müssen weitergehende Annahmen über die beteiligten Linienprofile gemacht werden um quantitative Aussagen zu erhalten.

Es ist also in der Praxis ratsam, wenn möglich eine der beiden erstgenannten Konfigurationen herzustellen. Dies ist innerhalb eines gewissen Rahmens durch die geeignete Wahl von Spiegelabstand und Anregungsquelle möglich.

Als mögliche Anregungsquellen stehen sowohl gepulste Laser als auch continuous-wave-Laser (Dauerstrichlaser) zur Verfügung.

Es erscheint dementsprechend sinnvoll, verschiedene CRDS-Aufbauten als gepulste CRDS oder continuous-wave-CRDS zu klassifizieren, da der experimentelle Aufbau und die Messmöglichkeiten charakteristisch für die jeweilige Anregungsquelle sind. In den folgenden beiden Abschnitten sollen die Eigenheiten beider Systeme und ihr schematischer Aufbau dargestellt werden.

2.4 Continuous-wave-CRDS

Bei der continuous-wave-CRDS (cw-CRDS) wird als Anregungsquelle ein (meist durchstimmbarer) Dauerstrichlaser verwendet. Dauerstrichlaser können eine extrem schmalbandige Anregung des absorbierenden Mediums liefern. Die spektrale Breite der Laseremission kann sehr kleine Werte annehmen, da sie für Pulslängen $t_p \rightarrow \infty$ nicht transformationsbegrenzt ist. Die Linienbreite ergibt sich in diesem Fall aus den Linienverbreiterungen, welche durch den Aufbau des verwendeten Lasers erzeugt werden. Dies bedeutet allerdings, daß der Resonator nur dann Leistung aus dem angebotenen Lichtfeld aufnehmen wird, wenn die Anregung nicht wie in Abb. 2.8 in ein Minimum der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$ fällt. Daher ist es notwendig eine Resonanzanpassung (meist an die TEM₀₀-Mode, siehe Abschnitt 2.2.2) vorzunehmen, also den Spiegelabstand auf ein ganzzahliges Vielfaches der halben Laserwellenlänge einzustellen. In diesem Fall fällt die Anregung mit einem Maximum der Transmissionsfunktion zusammen und eine longitudinale Grund-

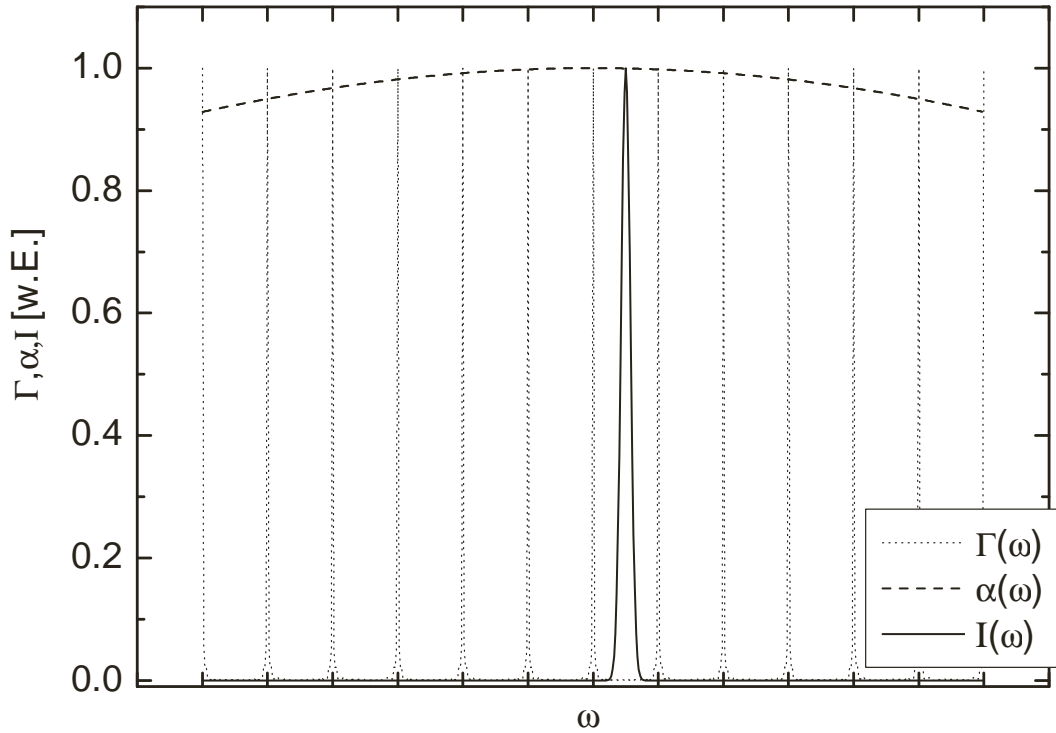


Abbildung 2.8: Schematische Gegenüberstellung der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$, des Anregungsprofils $I(\omega)$ und des Absorptionsprofils $\alpha(\omega)$ für den Fall $\delta\alpha \gg \Delta\omega > \delta I$.

mode kann anschwingen. Da eine solche Resonanzanpassung bei Wellenlängen im nm- oder μm -Bereich in der Praxis nur mit großem Aufwand aufrechterhalten werden kann, wird die Resonatorlänge meist periodisch moduliert, indem einer der Resonatorspiegel auf eine Piezostufe montiert wird. Die äußere Anregung fällt dann periodisch mit den Transmissionsmaxima von $\Gamma(\omega)$ zusammen. Die Position der Spiegel während des Abklingvorganges darf als konstant angenommen werden, solange die Modulationsfrequenz sehr viel kleiner als $1/\tau$ ist.

Da bei einer CRDS-Messung das Abklingverhalten des Resonators beobachtet werden soll, muß der anregende Laserstrahl während der eigentlichen Messung abgeschaltet werden. Dies wird durch die Verwendung eines geeigneten elektro- oder akusto-optischen Modulators erreicht. Entsprechende Modulatoren sind für verschiedene Wellenlängenbereiche verfügbar und erlauben Schaltzeiten kleiner als $1\ \mu\text{s}$. Das ist ausreichend, wenn man Abklingskonstanten im Bereich einiger zehn μs erwartet, was für CRDS-Messresonatoren ein typischer Wert ist.

Eine Intensitätsmodulation des cw-Lasers selbst ist nicht ratsam, da eine solche Modulation zu Lasten der Wellenlängenstabilität gehen kann oder möglicherweise das Nachleuchten des Lasers das Ringdown-Signal überlagert.

Der Ringdown der transmittierten Intensität wird dann mit einem geeigneten schnellen Detektor (Photodiode, Photomultiplier) aufgezeichnet, und der Signalaufbereitung und Datenaufzeichnung zugeführt. Diese besteht meist aus einem

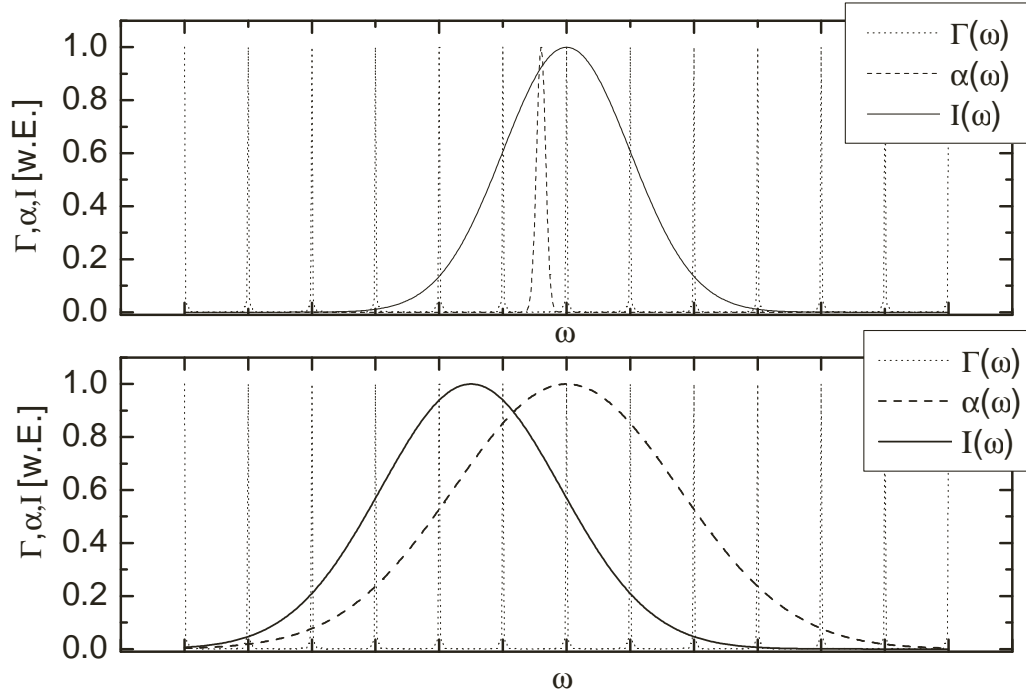


Abbildung 2.9: Schematische Gegenüberstellung der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$, des Anregungsprofils $I(\omega)$ und des Absorptionsprofils $\alpha(\omega)$ für den Fall $\delta I > \Delta\omega > \delta\alpha$ (oben) und $\delta\alpha \approx \delta I > \Delta\omega$ (unten).

Transimpedanzverstärker und z.B. einem Speicheroszillographen. Zusätzlich kann ein optischer Isolator in den Strahlengang eingebracht werden, um eine Rückkopplung des Messresonators an den Laserresonator zu vermeiden. Möchte man das Anschwingen transversaler Moden im Resonator unterdrücken, so kann optional eine Modenanpassungsoptik verwendet werden. Hierbei wird der Laserstrahl auf eine Beugungsöffnung ($d \simeq 50\text{--}100 \mu\text{m}$) fokussiert und das annähernd radial-gaußförmige Beugungsmaximum hinter der Öffnung auf die Strahltaille der TEM_{00} -Grundmode abgebildet.

Stimmt man nun die Wellenlänge der Anregung durch und misst so die Abklingkonstanten des Resonators als Funktion der Wellenlänge, so kann ein spektral aufgelöstes Absorptionsspektrum gemäß (2.13) aufgenommen werden.

2.5 Gepulste CRDS

Bei einer gepulsten Anregung des Resonators muss der Laserstrahl zur Messung nicht unterbrochen werden, da gepulste Laserquellen meist Pulse aussenden, deren Länge klein gegenüber der Abklingkonstanten des Messresonators ist. Unterschreitet die Pulslänge die Umlaufdauer des Lichtes im Resonator ($t_p < t_u$), so ist auch keine Resonanzanpassung an die Laserwellenlänge notwendig. Au-

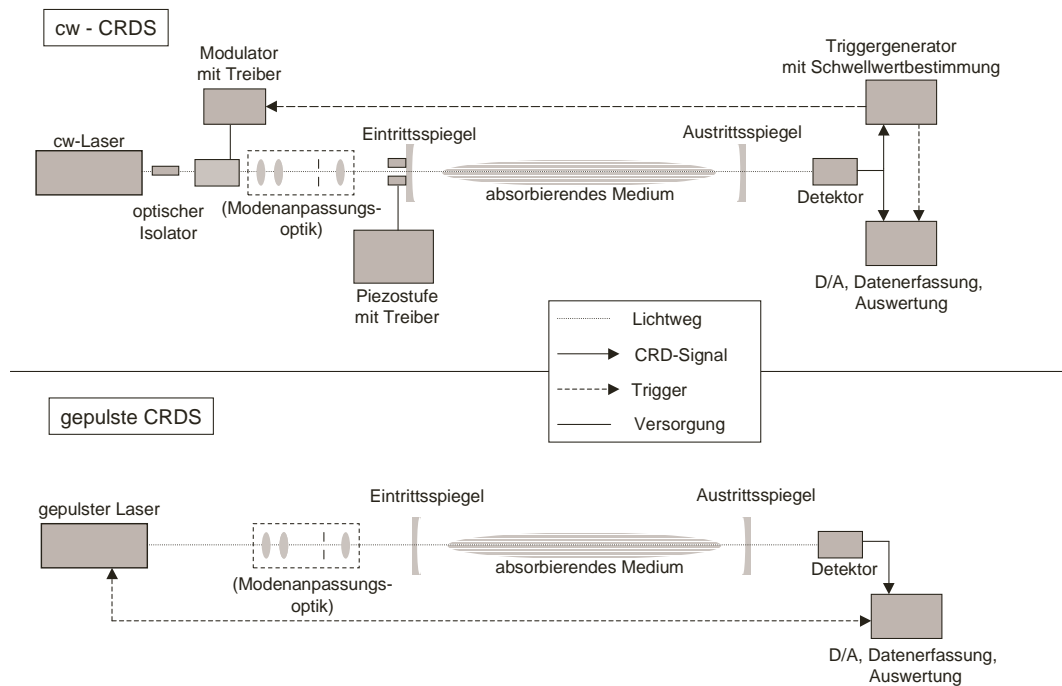


Abbildung 2.10: Mögliche Realisierung einer cw-CRDS und einer gepulsten CRDS (schematisch).

ßerdem nimmt der Resonator auch für $t_p \simeq t_u$ stets Leistung auf, da z.B. für eine Pulslänge kleiner als $t_p \simeq 7$ ns die spektrale Breite des Pulses bereits den freien Spektralbereich eines Resonators mit $d = 1$ m erreicht. Damit liegt stets ein Transmissionsmaximum von $\Gamma(\omega)$ im Frequenzbereich der Anregung. Diese Art von CRD-Aufbau ist dementsprechend einfacher (siehe Abb. 2.10) und eignet sich für breitbandige Absorptionen, bei denen die spektrale Auflösung nicht von Interesse ist. Auch hier kann bei Bedarf eine Modenanpassungsoptik verwendet werden. Schwingen allerdings mehrere longitudinale Moden gleichzeitig an, so können Schwebungen im transmittierten Signal nicht verhindert werden. Dies kann bei kurzen Pulsen und großen Spiegelabständen durchaus der Fall sein.

3 Wasserstoff–Niederdruckplasmen

Wasserstoff–Niederdruckplasmen spielen sowohl in der industriellen Anwendung als auch in der Fusionsforschung eine wichtige Rolle. In technischen Prozessen der Industrie wird Wasserstoff als Prozessgas verschiedensten Entladungen z.B. zur Veränderung von Oberflächen beigegeben. Diese Prozesse beinhalten sowohl das Säubern und Ätzen von Oberflächen durch Plasmaradikale als auch das aufwachsen von Schichten mit definierten Eigenschaften [Rot95][Jan92]. In der Fusionsforschung sind dichte, heiße Plasmen des Wasserstoffs und seiner Isotope von Interesse, um aus der Verschmelzung von Deuterium- und Tritiumkernen eine neue Energiequelle zu erschliessen [Sch93]. Die Plasmarandschicht in Fusionsexperimenten zeigt wiederum die für Niederdruckplasmen typischen Eigenschaften. Insgesamt decken Niederdruckplasmen den Druckbereich von etwa 0.01 Pa bis ca. 10000 Pa ab. Die geringen Drücke haben zur Konsequenz, daß die freien Weglängen der Plasmateilchen vergleichbar zur Ausdehnung des Plasmas selbst sein können. Dies führt zu geringen Stoßraten für die Plasmateilchen. Aus diesem Grund handelt es sich um sogenannte *Nichtgleichgewichtsplasmen*, da es kaum zu einer gegenseitigen Thermalisierung der Spezies im Plasmavolumen kommt. Daraus ergeben sich wichtige Konsequenzen für die Beschreibung solcher Plasmen, deren Gültigkeit nicht auf Wasserstoff als Arbeitsgas beschränkt ist.

3.1 Grundlegende Eigenschaften und Plasmaparameter

Die grundlegenden Plasmaparameter sind stets die Dichten und Temperaturen der im Plasma vorhandenen Spezies. Die im Folgenden angegebenen typischen Parameterbereiche beziehen sich dabei auf Laborplasmen und technologische Plasmen. Die Kernplasmen von Fusionsexperimenten erreichen weitaus extremere Parameter und lassen sich teilweise bereits durch ein lokales thermisches Gleichgewicht beschreiben.

Einem lokal homogenen Plasma läßt sich die Dichte der Elektronen n_e , der Ionen n_i und (in nicht vollständig ionisierten Plasmen) der neutralen Schwerteilchen n_n zuordnen. Aufgrund der bereits erwähnten schlechten Thermalisierung können sich für die Teilchensorten (Elektronen, Ionen und Neutrale) in Niederdruckplasmen stark unterschiedliche Temperaturen einstellen. Man unterscheidet daher zwischen den korrespondierenden Temperaturen T_e , T_i und T_n .

Da das Plasma in der Regel durch eine Heizung der Elektronen aufrechterhal-

ten wird, erreichen diese in Laborplasmen Temperaturen von $T_e=0.1 \text{ eV}^1$ bis ungefähr 10 eV. Die Einkopplung der Energie kann z.B. durch eine Gleichstromentladung, eine Hochfrequenzheizung oder durch Mikrowellenheizung erreicht werden. Einen Überblick über die verschiedenen Möglichkeiten der Plasmaerzeugung bieten u.a. [Gri94] und [Rot95]. Die Elektronendichten liegen typischerweise im Bereich $n_e=10^{15}\text{-}10^{18} \text{ m}^{-3}$. Da das Verhalten der Ladungsträger im Plasma durch die Coloumb–Wechselwirkung dominiert wird, läßt sich aufgrund der starken Rückstellkräfte keine makroskopische Ladungstrennung aufrechterhalten. Das Plasma ist daher nach außen stets *quasineutral*, und es gilt

$$n_e = \sum_Z Z \cdot n_i^Z . \quad (3.1)$$

Dabei ist n_i^Z die Dichte der Z -fach ionisierten Schwerteilchen. Liegen im Plasma überwiegend einfachionisierte Teilchen vor, so gilt in guter Näherung

$$n_i \simeq n_e . \quad (3.2)$$

Der Gesamtdruck der Entladung ist durch die Partialdrücke aller Plasmaspezies zu

$$p = k_B(n_n \cdot T_n + n_i \cdot T_i + n_e \cdot T_e) \quad (3.3)$$

gegeben. Da die betrachteten Niederdruckplasmen meist einen geringen Ionisationsgrad $\delta \equiv n_i/(n_i + n_n) \simeq n_e/n_n$ von 10^{-3} bis 10^{-6} aufweisen, kann für nicht allzugroße T_i und T_e der Gesamtdruck näherungsweise mit dem Druck des Neutralgases identifiziert werden. Man erhält die Neutralteilchendichte dann aus

$$n_n \simeq \frac{p}{k_B T_n} . \quad (3.4)$$

Die Schwerteilchentemperaturen T_n und T_i liegen im Gegensatz zu T_e weniger weit über der Umgebungstemperatur, da der Energieübertrag durch elastische Stöße zwischen Elektronen und Schwerteilchen aufgrund der hohen Massendifferenz und der bereits erwähnten geringen Stoßrate sehr ineffektiv ist. T_n und T_i bewegen sich daher im Bereich zwischen Raumtemperatur und einigen tausend Kelvin, je nach Heizmethode, Druck und Experimentgeometrie.

3.2 Wichtige Prozesse in Niederdruckplasmen

Befindet sich ein Plasma im thermodynamischen Gleichgewicht, so können alle wichtigen Systemeigenschaften wie z.B. das Strahlungsfeld, die dazugehörige

¹1 eV $\hat{=}$ 11605 K. Richtig wäre: $k_B T_e=0.1 \text{ eV}$. Es ist allerdings gebräuchlich, die Boltzmannkonstante in der Notation zu unterdrücken. Diese Konvention wird verwendet, soweit sie im Kontext nicht irreführend ist. Außerdem kann man strenggenommen nur im Fall einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung von einer Temperatur sprechen.

Besetzung angeregter Zustände in den Atomen und Molekülen, die Geschwindigkeitsverteilung sowie das Ionisationsgleichgewicht direkt als Funktion einer universellen Temperatur T angegeben werden. Auf mikroskopischer Ebene stattfindende Einzelprozesse müssen in diesem Fall nicht betrachtet werden.

Die spektrale Energiedichte des Strahlungsfeldes als Funktion der Frequenz ist in diesem Fall durch die Planck–Strahlung

$$\rho(\nu, T) d\nu = \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} \cdot \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1} d\nu, \quad (3.5)$$

die Besetzung angeregter Zustände durch die Boltzmann–Statistik

$$\frac{n_i}{n_k} = \frac{g_i}{g_k} e^{\frac{-(E_i - E_k)}{k_B T}} \quad (3.6)$$

gegeben. Dabei sind n , g und E jeweils die Teilchendichten, statistischen Gewichte und Energien der betrachteten Zustände.

Die Geschwindigkeitsverteilung der Plasmateilchen ist durch die Maxwell–Verteilung gemäß

$$\frac{dN}{N} = \frac{4v^2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{m_e}{2k_B T} \right)^{3/2} \exp\left(\frac{-m_e v^2}{2k_B T} \right) dv \quad (3.7)$$

gegeben. Dabei ist dN/N der Anteil der Teilchen, deren Geschwindigkeit zwischen v und $v + dv$ liegt. Das Ionisationsgleichgewicht folgt der Saha–Gleichung:

$$n_e \frac{n_{Z+1}}{n_Z} = 2 \cdot \frac{Q_{Z+1}}{Q_Z} \frac{(2\pi m_e kT)^{3/2}}{h^3} \cdot e^{\frac{E_{ion}}{k_B T}}. \quad (3.8)$$

n_Z und n_{Z+1} sind die Dichten der Z –fach bzw. $Z + 1$ –fach ionisierten Atome oder Moleküle, Q_Z und Q_{Z+1} deren Zustandssummen, sowie $2 \cdot \frac{(2\pi m_e kT)^{3/2}}{h^3}$ die Zustandssumme der Elektronen. E_{ion} ist dabei die nötige Energie, um das Z –fach ionisierte Atom oder Molekül auf die nächsthöhere Ionisationsstufe zu bringen. Eine gegenseitige Bilanzierung aller Stoßprozesse läßt sich für hohe Plasmadichten teilweise noch realisieren. Um die Strahlungsbilanz zu erfüllen, müsste das Plasma allerdings Abmessungen im Bereich der freien Weglänge der Photonen besitzen.

Liegt ein Plasma fern des Gleichgewichtes vor, so wird das System durch die Bilanzierung von jeweils dominierenden Einzelprozessen bestimmt. Es ist dann notwendig, diese Prozesse einzeln zu betrachten:

- *Elektronenstoßanregung*: Trifft ein schnelles Elektron auf ein Atom, so kann es einen Teil seiner kinetischen Energie abgeben und dadurch ein Schalen–elektron in einen Zustand höherer Energie anheben:



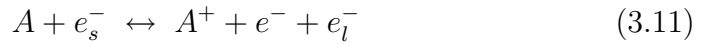
Trifft der Prozess in Gegenrichtung ein, so heißt er *Stoß zweiter Art*.

- *Absorption*: Ein Atom nimmt aus dem umgebenden Strahlungsfeld ein Photon passender Energie auf und geht in einen elektronisch angeregten Zustand über:



Gibt ein angeregtes Atom spontan Strahlung ab, so heißt der Vorgang *spontane Emission*.

- *Elektronenstoßionisation*: Bei einem Elektron–Atom–Stoß wird genug Energie übertragen, um ein Schalelektron vollständig abzulösen:



Der Umkehrprozess heißt *Dreierstoßrekombination*.

- *Photoionisation*: Im Gegensatz zur Elektronenstoßionisation wird ein Elektron durch die Aufnahme eines Lichtquants aus dem Strahlungsfeld vom Atom gelöst:



In diesem Fall bezeichnet man den Umkehrprozess als *Strahlungsrekombination*.

Dabei ist es wichtig sich zu vergegenwärtigen, daß die Prozesse mit den jeweils angegebenen Rückprozessen *nicht* im Gleichgewicht stehen. Vielmehr müssen die Erzeugungsprozesse mit den jeweils tatsächlich dominierenden Verlustprozessen bilanziert werden: Bei geringen Stoßraten ist die Diffusion aus dem Plasmavolumen hinaus zur Gefäßwand der dominierende Verlustprozess für die Teilchensorten im Plasma, für angeregte Zustände dieser Teilchen ist es die spontane Emission von Strahlung.

Eine derartige Überlegung soll exemplarisch anhand eines einfachen nulldimensionalen Modells für die Elektronentemperatur T_e demonstriert werden:

Im stationären Betrieb der Plasmaquelle stellen sich im Plasma stationäre Elektronen- und Ionendichten n_e und n_i ein. Dann muss für die Quell- und Vernichtungsterme der Ionen gelten:

$$\Gamma^+ = \Gamma^- . \quad (3.13)$$

Der für die Erzeugung der Plasmaionen führende Term ist die Stoßionisation neutraler Plasmateilchen durch schnelle Elektronen. Er hängt von den Dichten der Edukte n_e und n_n im Volumen und einem effektiven Ionisationsratenkoeffizienten $S_{eff}(T_e)$ ab. Diese Erzeugung wird durch die endliche Einschlusszeit τ_i bilanziert, nach welcher ein Ion dem Plasma durch Diffusion verloren geht.

$$n_n n_e S_{eff}(T_e) = \frac{n_i}{\tau_i} . \quad (3.14)$$

Dabei wird τ_i vom Gesamtdruck, der Gasmischung und der Gefäßgeometrie bestimmt. Mit (3.2) folgt

$$n_n S_{eff}(T_e) \simeq \frac{1}{\tau_i} . \quad (3.15)$$

Die Elektronentemperatur muß sich also für unterschiedliche Gase (und damit unterschiedliche S_{eff}) bei konstantem Druck stets so einstellen, daß der Zusammenhang 3.15 erfüllt ist. Gleiches gilt für eine gleichbleibende Gasmischung bei Variation des Druckes. Tatsächlich beobachtet man für Gase mit insgesamt geringerem Ionisationsratenkoeffizienten höhere Elektronentemperaturen, während die Elektronentemperatur mit steigendem Druck sinkt. Der tatsächliche Wert von T_e hängt von der korrekten Bestimmung der Größen $S_{eff}(T_e)$ und τ_i ab. Dies ist in der Regel nicht trivial, man erhält jedoch aus der einfachen Bilanz 3.15 sofort die *qualitativ* richtigen Abhängigkeiten.

3.3 Ionen des Wasserstoffs

Wasserstoff liegt in seiner stabilen Form in der Natur als zweiatomiges Molekül (H_2) vor. In einem Wasserstoffplasma kann es durch Stöße mit schnellen Elektronen zur Dissoziation des Wasserstoffmoleküls kommen, so daß sich eine bestimmte Dichte atomaren Wasserstoffs (H) einstellt. Sowohl der molekulare als auch der atomare Wasserstoff können dann durch weitere Stöße ionisiert oder durch Ladungsaustausch umgeladen werden, so daß sich eine große Anzahl verschiedener Ionen bilden kann (H^+ , H^- , H_2^+ , H_3^+ , ...). In Plasmen aus Gasmischungen können sich außerdem komplexe Molekülionen unter Beteiligung anderer Spezies bilden. Dabei hängt der jeweilige Anteil der einzelnen Ionensorten an der gesamten Ionendichte im Wesentlichen vom Gesamtdruck, von der Elektronendichte und -temperatur sowie den beteiligten Ionisationsratenkoeffizienten ab. Da im Rahmen dieser Arbeit die Ionen H_3^+ und H^- eine große Rolle spielen werden, sollen diese beiden Ionenspezies nun detaillierter betrachtet werden.

3.3.1 H_3^+

Das Ion H_3^+ ist das einfachste polyatomare Molekül, d.h. das einfachste denkbare Molekül aus mehr als zwei Atomen (zweiatomige Moleküle werden in der Molekülphysik als eigenständiger Spezialfall behandelt). Seine Existenz wurde bereits im Jahre 1912 von J.J. Thompson [Tho12] postuliert, ein spektroskopischer Nachweis seines IR-Spektrums gelang allerdings erst 1980 [Oka80], da die Strahlungsübergänge des H_3^+ extrem kleine Übergangswahrscheinlichkeiten aufweisen und ein spektroskopischer Nachweis im Labor hohe Anforderungen an den Versuchsaufbau stellt. H_3^+ kann in astrophysikalischen Plasmen und in Laborplasmen einen großen Teil der Ionendichte ausmachen, da es über den exothermen Stoß



mit $\Delta E \simeq -1.7$ eV gebildet wird. Die Vorgang läuft mit dem Langevin-Ratenkoeffizienten

$$X_L = 2 \cdot 10^{-15} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1} \quad (3.17)$$

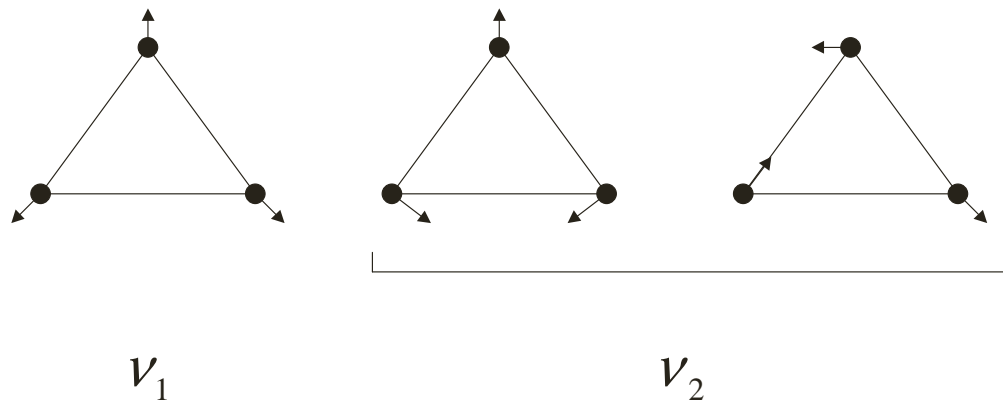


Abbildung 3.1: Schwingungseigenmoden ν_1 und ν_2 des H_3^+ -Ions [McN95].

ab [BEJ69]. Das H_3^+ ist einerseits von großem theoretischem Interesse, da es das einfachste Modellsystem zur Überprüfung quantenmechanischer Methoden zur Beschreibung mehratomiger Moleküle darstellt [JKRK94][MT88]. Zu diesem Zweck wird versucht, das Infrarotspektrum des H_3^+ im Labor mit immer höherer Präzision zu messen [VCa94], um dann dieses Spektrum mit den theoretischen Vorhersagen zu vergleichen [MO00]. Andererseits wird u.a in der Astrophysik seine Reaktionskinetik untersucht, um dadurch Einblick in die interstellare Chemie zu erhalten [MP02].

Molekulare Eigenschaften

Im Folgenden sollen die wichtigsten Eigenschaften des H_3^+ -Ions kurz zusammengefasst werden. Eine sehr detaillierte Beschreibung der zugrundeliegenden Molekülphysik findet man in [McN95]. Dort wird auch zwischen H_3^+ , D_3^+ und den Isotopomeren H_2D^+ und D_2H^+ unterschieden. Die Spektren von D_3^+ , T_3^+ und den Isotopomeren unterscheiden sich stark vom Spektrum des H_3^+ , da jede Änderung der beteiligten Kernmassen die Vibrationszustände des Gesamtmoleküls zu anderen Energien hin verschiebt. Daher soll die Betrachtung im vorliegenden Falle auf H_3^+ beschränkt bleiben.

Der Grundzustand des H_3^+ ist ein gleichseitiges Dreieck aus drei Protonen, wobei es keine stabilen elektronisch angeregten Zustände gibt. Die Protonen tragen jeweils den Spin $1/2$, so daß für den Gesamtspin die Werte $1/2$ oder $3/2$ möglich sind. Das Molekül heißt dann para- H_3^+ bzw. ortho- H_3^+ . Von diesem intrinsischen Drehimpuls der Kerne I ist der Drehimpuls J zu unterscheiden, welcher durch die Rotation des gesamten Moleküls im Raum gegeben ist. Wie bei allen Molekülen lassen sich auch beim H_3^+ die beteiligten Kerne zueinander in Schwingung versetzen. In der Nähe des Grundzustandes lassen sich die Vibrationsanregungen nach

Quantenzahl	Bedeutung	Erlaubte Änderung
P	Parität	$- \leftrightarrow +$
I	Kernspin	0
J	Gesamtdrehimpuls	$0, \pm 1$, nicht jedoch $0 \leftrightarrow 0$
k	Projektion von J	± 1
l	Drehimpulsbeitrag durch ν_2	$\neq 3n, n \in \mathbb{N}$
G	$ k-l $	$3n, n \in \mathbb{N}$

Tabelle 3.1: Auswahlregeln für Dipolübergänge des H_3^+ nahe des Grundzustandes nach [MO00]

drei Grundswingungsmoden entwickeln (Abb. 3.1). Diese werden unterteilt in die sogenannte ν_1 -Mode, welche einem symmetrischen Aufblähen und Stauchen des Moleküls gleichkommt, und eine zweifach entartete ν_2 -Mode, bei der sich die Winkel zwischen den Dreiecksschenkeln ändern.

Die ν_1 -Mode wird aufgrund der charakteristischen Bewegung des Moleküls auch als „breathing-mode“ bezeichnet. Sie ändert nur die Polarisierung des Moleküls und ist daher Raman-aktiv.

Die ν_2 -Mode ist IR-aktiv, da ihre An- und Abregung mit einer Drehimpulsänderung des Moleküls verbunden ist. Die quantisierte Anregung dieser Vibrationen wird durch die entsprechenden Quantenzahlen ν_1 und ν_2 beschrieben. Die Quantenzahl l gibt den durch die Anregung von ν_2 erzeugten Beitrag zum Drehimpuls J an und kann die Werte $\nu_2, \nu_2 - 2, \dots, -\nu_2 + 2, -\nu_2$ annehmen.

Für viele Moleküle wird eine Quantenzahl k verwendet, welche die Projektion des Drehimpulses J auf die Symmetrieachse des Moleküls angibt. Dieses Verfahren ist für das H_3^+ -Ion nur schlecht anwendbar, da die Zustände mit gleicher Differenz $|k - l|$ energetisch nahezu entartet sind. Daher bietet es sich an, stattdessen den Wert $G \equiv |k - l|$ selbst als näherungsweise Quantenzahl zur Beschreibung des Molekülzustandes zu verwenden. Für Dipolübergänge gelten die in Tab. 3.1 dargestellten Auswahlregeln [MO00]. Dabei ist zu beachten, daß nur die Auswahlregeln für P, I und J auch für starke Anregung ohne Ausnahmen gelten. Für starke Verzerrungen des Moleküls (also für große ν_2) lassen sich eigentlich „verbotene“ Übergänge mit messbarer Intensität beobachten [XRGO92]. Außerdem tragen alle Zustände des para- H_3^+ die kernspininduzierte Multiplizität $g^*=2$, alle Zustände des ortho- H_3^+ die kernspininduzierte Multiplizität $g^*=4$.

Abbildung 3.2 zeigt eine eindimensionale Darstellung der potentiellen Energie des H_3^+ nach [JKRK94].

Dabei wurde der Winkel θ zwischen zwei Dreiecksschenkeln variiert. Man erkennt deutlich die steile Flanke durch die Coulomb-Abstoßung der Protonen für $\theta \rightarrow 0$ und den Grundzustand minimaler Energie als gleichseitiges Dreieck ($\theta = \pi/3$). Für $\theta = \pi$ wird H_3^+ zu einem linearen Molekül und die potentielle Energie ändert sich nur wenig bei Variation von θ . Außerdem sind die minimalen Anregungsenergien für verschiedene Anregungszustände $\nu_1\nu_1 + \nu_2\nu_2$, sowie einige Übergänge eingetragen.

Die Rotationsbande aus dem Übergang $0 \leftarrow \nu_2$ (1) heißt *Fundamentalbande* des H_3^+ . Übergang (2) zeigt ein Beispiel für eine sog. *Obertonbande*. Dies sind alle

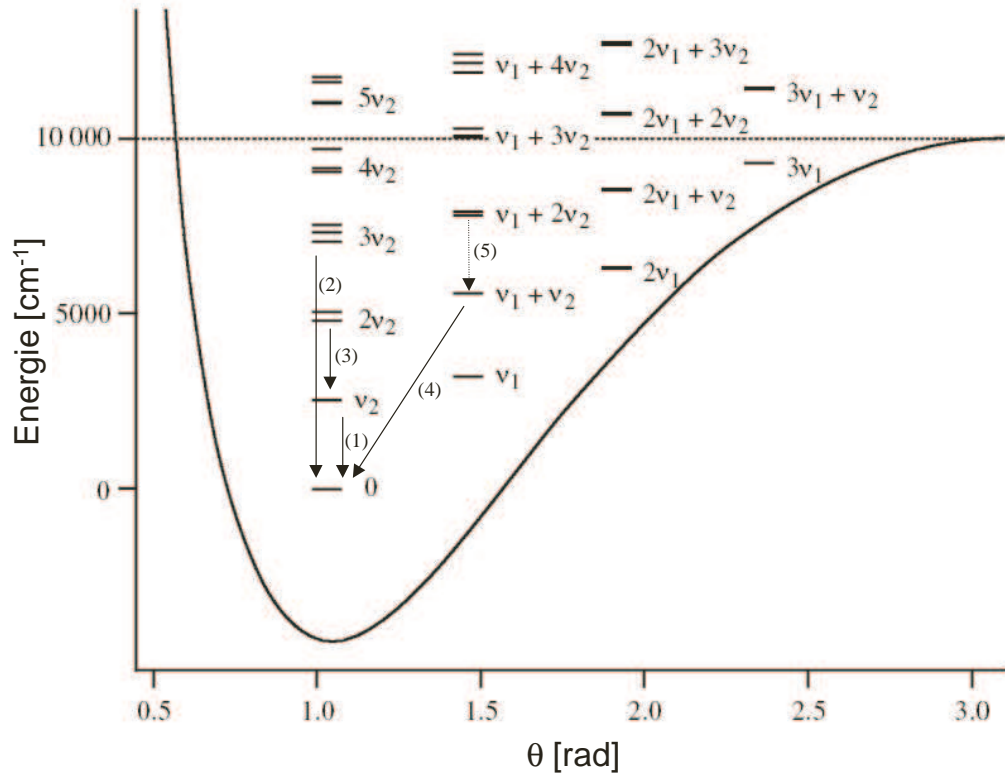


Abbildung 3.2: Potentielle Energie des H_3^+ in Abhängigkeit des Winkels θ und Energieminima für die Anregungen $v_1\nu_1 + v_2\nu_2$.

Übergänge mit $v_1 = 0$ und $v_2 \neq 1$. Banden welche nicht auf dem Grundzustand enden werden als *heiße Banden* bezeichnet (3). Außerdem gibt es sogenannte *Kombinationsbanden* (4), bei denen sich v_1 und v_2 gleichzeitig ändern. *Verbotene Banden* (5) sind Übergänge, welche nur eine Anregungsänderung der Dipol-inaktiven ν_1 -Mode beinhalten.

Die spektroskopische Notation einer einzelnen Rotationslinie innerhalb eines Überganges ist von der Form

$$^{[n|t]} \{P|Q|R\} (J, G)_{[u|l]}^{[u|l]}. \quad (3.18)$$

Dabei sind $\Delta J = \{-1|0|+1\} = \{P|Q|R\}$, analog zur Konvention für zweiatomige Moleküle.

(J, G) sind die Werte der entsprechenden Quantenzahlen J und G im unteren Zustand des Überganges. Die Subskripte und Superskripte n, t, u und l können gesetzt werden, um dadurch Mehrdeutigkeiten bei Entartungsfällen klarzustellen, da z.B. ein Wert $G = |k - l|$ durch verschiedene Kombinationen aus k und l erzeugt werden kann. Details dazu findet man in [Her45][McC00].

Messung absoluter Dichten

Die absolute Stärke einer Absorptionslinie im Plasma hängt sowohl von der Übergangswahrscheinlichkeit der Linie selbst, als auch von der Besetzung des unteren Zustandes der Absorptionslinie ab. Möchte man aus dem Absorptionssignal nicht nur die Besetzungsdichte des absorbierenden Zustandes, sondern die Gesamtdichte der dazugehörigen Spezies erhalten, so müssen weitergehende Annahmen über die Besetzungsstatistik der angeregten Zustände innerhalb der absorbierenden Teilchen gemacht werden.

Während die Übergangswahrscheinlichkeit aus der Faltung der beteiligten Wellenfunktionen mit dem Dipolmoment als feste Größe hervorgeht, hängt die Besetzung des unteren Zustandes der Absorptionslinie von der thermischen Besetzung der Rotations- und Vibrationszustände im Molekül ab. Elektronisch angeregte Zustände müssen im konkreten Fall des H_3^+ nicht berücksichtigt werden.

Da die Rotations- und Vibrationszustände von Molekülspezies im Plasma stark unterschiedlichen Anregungsmechanismen unterliegen, ist häufig eine Unterscheidung zwischen der Rotationstemperatur T_{rot} und der Vibrationstemperatur T_{vib} der angeregten Zustände notwendig.

So ist beispielsweise für das H_2 -Molekül die Rotationstemperatur in Niederdruckplasmen ähnlich der Gastemperatur, während die Vibrationstemperatur zusätzlich durch Stöße mit schnellen Elektronen modifiziert wird und weit überhalb der Rotationstemperatur liegen kann [Heg03].

Unter Annahme einer thermischen Besetzung mit den Temperaturen T_{rot} und T_{vib} läßt sich ein Skalierungsfaktor für die Absorptionsstärke einer Linie ermitteln:

Bildet man für verschiedene Temperaturen die Zustandssumme des H_3^+ und setzt diese ins Verhältnis zum Boltzmannfaktor eines gegebenen einzelnen Zustandes, so erhält man einen Skalierungsfaktor

$$f_k(T_{rot}, T_{vib}) = \frac{\sum_i g_i \cdot e^{-E_{vib,i}/k_B T_{vib}} \cdot e^{-E_{rot,i}/k_B T_{rot}}}{g_k \cdot e^{-E_{vib,k}/k_B T_{vib}} \cdot e^{-E_{rot,k}/k_B T_{rot}}} \quad (3.19)$$

welcher das Verhältnis der Gesamtdichte an H_3^+ zur Dichte des Einzelzustandes widerspiegelt.

Abbildung 3.3 zeigt das Ergebnis einer solchen Abschätzung für den unteren Zustand der Absorptionslinie $\text{P}(3,3) \ 3\nu_2 \leftarrow 0$ des H_3^+ . Dabei ist das statistische Gewicht $g_k=28^2$ und $E_k=0.039$ eV. In der Zustandssumme sind Zustände bis zu einer Energie von 1.1 eV berücksichtigt, entsprechend der von [LM01] angegebenen Datenbasis.

Für eine Rotationstemperatur von 600 K und eine Vibrationstemperatur von 1500 K ermittelt man einen Faktor von $f=11$, d.h. für die im Beispiel gewählten Besetzungstemperaturen tragen $\frac{1}{11}$ der tatsächlich vorhandenen H_3^+ zum Absorptionssignal bei.

²Es gilt: $g = (2J + 1) \cdot g^*$, hier mit $J=3$ und $g^*=4$, da es sich um einen Übergang des ortho- H_3^+ handelt.

In Anbetracht der Tatsache, daß ungefähr tausend Zustände an der Zustandssumme beteiligt sind, stellt dies einen sehr großen Bruchteil dar. Diese hohe Besetzung kommt zustande, da der betrachtete Zustand innerhalb des vibratorischen Grundzustandes liegt und gleichzeitig ein hohes statistisches Gewicht aufweist. Er eignet sich daher als Ausgangszustand für Absorptionsmessungen. Eine aus der Auswertung der Absorptionslinie ermittelte Dichte im unteren Zustand kann dann auf die Gesamtdichte aller H_3^+ skaliert werden.

McCall stellt tabellierte Linienstärken α^* basierend auf [NMT96] für verschiedene Übergänge des H_3^+ zur Verfügung, welche den Faktor f_k für frei wählbare Besetzungstemperaturen bereits beinhalten [McC]. Diese tragen die Einheit $[cm^{-2} atm^{-1}]$, geben also die integrierte Absorption einer Linie pro absorbierender Länge in cm und Atmosphäre an, wobei das Spektrum über die Wellenzahl in cm^{-1} aufgetragen ist. Dabei entspricht eine Atmosphäre einer Teilchendichte von $n_{Atm}=2.68 \cdot 10^{25} m^{-3}$.

Liegt ein gemessenes Spektrum vor, so erhält man die absolute Dichte somit zu

$$n(H_3^+) = \frac{1}{l} \cdot \frac{\int_{Linie} \alpha(k) \cdot l dk}{\alpha^*(T_{rot}, T_{vib})} \cdot n_{Atm} = \frac{\int_{Linie} \alpha(k) dk}{\alpha^*(T_{rot}, T_{vib})} \cdot 2.68 \cdot 10^{25} m^{-3} . \quad (3.20)$$

3.3.2 H^-

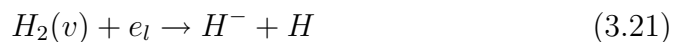
Lagert sich ein zusätzliches Elektron an ein Wasserstoff- oder Deuteriumatom an, so bildet sich das negative Wasserstoffion H^- bzw. das korrespondierende Deuteriumion D^- . Im Folgenden wird aus Gründen der Übersichtlichkeit nur auf H^- Bezug genommen, da alle Überlegungen für D^- in gleicher Weise gelten.

Das Wasserstoffatom besitzt eine relativ geringe Elektronenaffinität, so daß das zusätzliche Elektron nur mit einer Energie von $\Delta E=0.77$ eV gebunden ist [Bar77]. Das H^- besitzt keinen angeregten elektronischen Zustand unterhalb dieser Dissoziationsschwelle. Da es im Gegensatz zum H_3^+ kein Molekülion ist, existieren auch keine rotatorischen oder vibratorischen Anregungsniveaus.

In Wasserstoffplasmen unterliegt das H^- verschiedenen Erzeugungs- und Vernichtungsprozessen. Nachdem die gezielte Erzeugung von H^- in der aktuellen Forschung zur Fusionstechnologie ein wichtiges Thema darstellt (siehe Kapitel 5), lohnt es sich an dieser Stelle einen Überblick über die Erzeugungs- und Vernichtungsprozessen zu geben [BMB96].

Die wichtigsten Erzeugungsprozesse sind

- *Dissoziative Anlagerung:*



Bei diesem Prozess dissoziiert ein vibratorisch angeregtes Wasserstoffmolekül nach dem Stoß mit einem langsamen Elektron in ein H^- und ein neu-

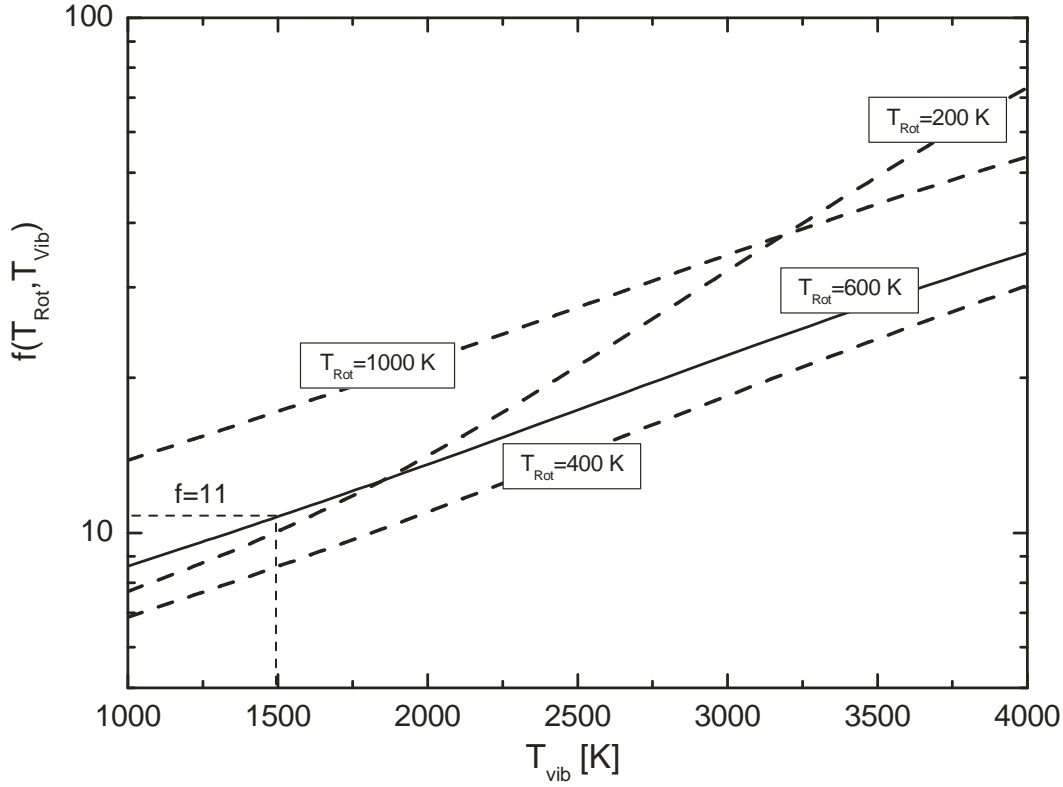


Abbildung 3.3: Verhältnis der Zustandssumme des H_3^+ -Moleküls zum Boltzmannfaktor des Zustands $(v_1, v_2, J, G) = (0, 0, 3, 3)$ für verschiedene Rotations- und Vibrationstemperaturen.

trales Wasserstoffatom. Dabei wird das H^- direkt im Plasmavolumen gebildet. Solange genügend vibrationsangeregter Wasserstoff vorliegt wird der Prozess durch niedrige Elektronentemperaturen begünstigt, da der Einfang des Elektrons e_l mit sinkender Elektronenenergie stark an Wahrscheinlichkeit zunimmt [JLEP87]. Dies gilt vor allem für $H_2(v \geq 5)$.

Der als Edukt benötigte vibrationsangeregte molekulare Wasserstoff entsteht im Plasmavolumen durch Stöße mit schnellen Elektronen, bei denen das H_2 -Molekül elektronisch angeregt wird. Nach dem Strahlungszerfall des angeregten Zustandes kann das Molekül dann als $H_2(v \neq 0)$ vorliegen.

- *Elektroneneinfang an Oberflächen:*



Negative Wasserstoffionen können nicht nur im Plasmavolumen, sondern auch an den dem Plasma angebotenen Oberflächen gebildet werden. Hierbei treffen positive Wasserstoffionen oder atomarer Wasserstoff auf die Oberfläche, lagern ein Elektron aus dem Oberflächenmaterial an und verlassen die Oberfläche als H^- . Die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozess hängt in erster Linie von der Austrittsarbeit für Elektronen des Oberflächenmaterials und von der Energie der einfallenden Teilchen ab. Besitzt die Oberfläche

eine geringe Austrittsarbeit, so kann dieser Prozess im oberflächennahen Bereich des Plasmas gegenüber der Volumenproduktion stark dominieren.

Diese Erzeugungprozesse werden (neben dem Diffusionsverlust aus dem Plasmavolumen heraus) auch durch verschiedene Vernichtungsprozesse im Plasma selbst bilanziert. Die dominierenden Prozesse sind in diesem Fall

- *Elektronenabstreifung:*



Aufgrund der geringen Bindungsenergie von $\Delta E = 0.77$ eV läßt sich das zusätzliche gebundene Elektron des H^- leicht durch die Kollision mit einem freien Elektron ausreichender Energie abstreifen. Daher nimmt die Lebensdauer von H^- im Volumen mit steigender Elektronentemperatur stark ab.

- *gegenseitige Neutralisation:*



Bei der gegenseitigen Neutralisation rekombiniert H^- direkt mit H^+ zu neutralem atomaren Wasserstoff. Dieser Vorgang kann auch mit einem der positiven Molekülionen H_x^+ als Edukt ablaufen, wobei auf der rechten Seite von (3.24) der entsprechende Rest H_x zurückbleibt.

- *assoziatives Detachment:*



Bei diesem Prozess rekombiniert das H^- mit einem neutralen Wasserstoffatom zu molekularem Wasserstoff, wobei ein Elektron freigesetzt wird. Dieser Prozess findet im Volumen unabhängig von den Plasmaelektronen oder anderen Ionenspezies statt.

Die tatsächliche Dichte der H^- im Plasmavolumen hängt in sehr empfindlicher Weise vom jeweiligen Gleichgewicht all dieser Reaktionen ab. Dabei laufen die beschriebenen Prozesse in Abhängigkeit von den Dichten der Edukte und der beteiligten Wirkungsquerschnitte selbstständig ab.

Im Gegensatz dazu kann das sogenannte *Photodetachment*



durch ein äußeres Strahlungsfeld gezielt herbeigeführt werden. Hierbei handelt es sich um einen Vernichtungsprozess bei dem das zusätzliche Elektron durch die Absorption eines Photons abgelöst wird. Dies gelingt aufgrund der geringen Bindungsenergie bereits ab Lichtwellenlängen kleiner als $\lambda_{PD} \simeq 1.6 \mu\text{m}$. Praktisch alle Messmethoden zum Nachweis von H^- im Plasmavolumen nutzen diesen Prozess. Abbildung 3.4 zeigt den Photodetachmentquerschnitt des H^- als Funktion der eingestrahnten Wellenlänge [Bac00].

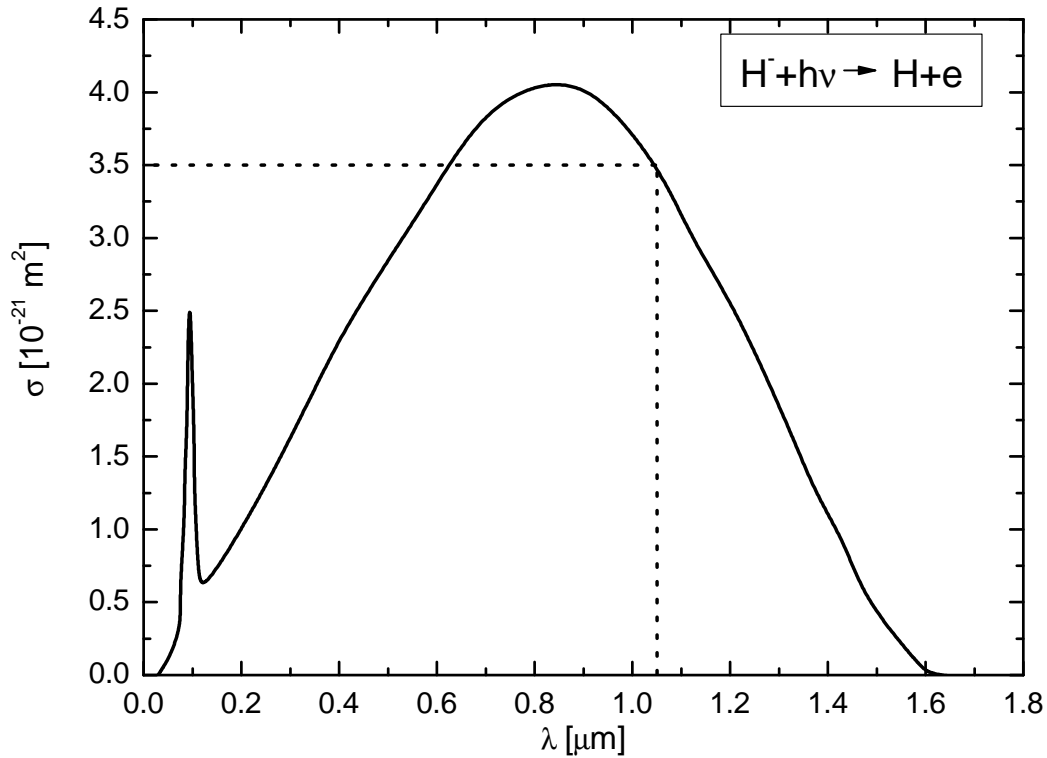


Abbildung 3.4: Photodetachment–Querschnitt des H^- als Funktion der eingestrahlteten Wellenlänge. Bei der Grundfrequenz eines Nd:YAG–Lasers ($1.064 \mu\text{m}$) beträgt dieser $3.5 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$.

3.4 Diagnostik von Niederdruckplasmen

Um ein gegebenes Plasma untersuchen zu können, werden diagnostische Methoden für die Plasmaparameter (Dichten und Temperaturen der Elektronen und Schwereteilchen, Dissoziationsgrad, ...) benötigt. Meist kommen Langmuir–Sonden, interferometrische Methoden und spektroskopische Verfahren zum Einsatz, wobei jede Diagnostikmethode jeweils andere Plasmaparameter mit unterschiedlicher Qualität zugänglich macht und spezifische Vor- und Nachteile mit sich bringt. Durch geschickte Kombination verschiedener Methoden und mit dem Wissen um die jeweiligen Stärken und Schwächen der Diagnostiken ist in den meisten Fällen eine sehr genaue Charakterisierung eines vorliegenden Plasmas möglich.

Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über verschiedene häufig verwendete Plasmadiagnostiken gegeben.

3.4.1 Langmuir-Sonden

Bei Messungen mit einer Langmuir-Sonde wird ein dünner Draht auf einer isolierenden Halterung in das Plasmavolumen eingebracht. Wird dieser Draht durch eine externe Spannungsquelle gegenüber der Wand des Plasmagefäßes vorgespannt, so erzeugen die freien Ladungsträger im Plasma einen messbaren Strom auf den Sondendraht. Variiert man die Spannung, so kann eine U/I-Kennlinie aufgenommen werden, deren charakteristische Form Informationen über die Plasmaparameter enthält [Lan24]. Die folgende Diskussion gilt für den Fall eines zylinderförmigen Sondendrahtes, wie er meist benutzt wird.

Abbildung 3.5 zeigt den schematischen Aufbau eines Langmuir-Sonden-Systems sowie eine typische U/I-Kennlinie. Bei stark negativer Vorspannung misst man den Strom der Plasmaionen auf die Sondenspitze, den sogenannten *Ionensättigungsstrom*. Senkt man die negative Vorspannung, so erreichen zunehmend schnelle Elektronen die Sondenspitze und beginnen den Ionenstrom zu kompensieren. Am *Floatingpotential* Φ_F fließt kein Nettostrom auf die Sonde. Dies ist das Potential, auf welches sich ein isoliert ins Plasma eingebrachter Körper auflädt.

Das Zustandekommen dieser Aufladung läßt sich anschaulich verstehen: Ladungsträger aus dem Plasma werden nach dem Auftreffen auf die Oberfläche des Körpers größtenteils zurückgehalten, so daß die Oberfläche eine Senke für die auftreffenden Flüsse Γ_e und Γ_i der Elektronen bzw. der Plasmaionen darstellt. Allerdings ist $\Gamma_x \propto n_x \cdot \bar{v}_x$. Für die mittleren Geschwindigkeiten gilt sicherlich $\bar{v}_e \gg \bar{v}_i$, da die Elektronen eine vielfach geringere Masse als die Plasmaionen besitzen und zusätzlich meist bei höherer Temperatur vorliegen.

Mit $n_e = n_i$ folgt dann, daß $\Gamma_e \gg \Gamma_i$ ist. Das Plasmavolumen würde also pro Zeiteinheit viel mehr Elektronen als Ionen an die Oberfläche verlieren und somit die eigene Quasineutralität verletzen. Daher lädt sich die Oberfläche gegenüber dem Plasma negativ auf, bis das Gleichgewicht der Flüsse $\Gamma_e = \Gamma_i$ erreicht ist.

Für positive Vorspannungen steigt der Elektronenstrom auf die Sonde stark an. Die Kennlinie ändert ihre Krümmung am Plasmapotential $\Phi_{ext} = \Phi_P$. Das Plasmapotential ist das Potential, welches das Plasmavolumen gegenüber einer geerdeten Gefäßwand annimmt.

Für noch höhere positive Vorspannungen misst man den *Elektronensättigungsstrom*. Dieser läßt sich in der Praxis jedoch nicht immer erreichen, da die Sondenspitze durch hohe Ströme zerstört werden kann. Aus dieser Sondenkennlinie lassen sich außer den charakteristischen Potentialen auch n_e und T_e bestimmen. Die Elektronendichte n_e erhält man z.B. aus dem Strom am Plasmapotential zu

$$n_e = \frac{1}{A_s e} \sqrt{\frac{2\pi m_e}{kT_e}} I(\Phi_P) . \quad (3.27)$$

Dabei ist A_s die Sondenoberfläche. Man muss für dieses Verfahren allerdings eine Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen annehmen, da ansonsten die Angabe einer Elektronentemperatur nicht sinnvoll ist.

Ein großer Vorteil von Sondenmessungen besteht in der Tatsache, daß es sich um eine lokale Messung am Ort der Sondenspitze handelt. Läßt sich die Sonde

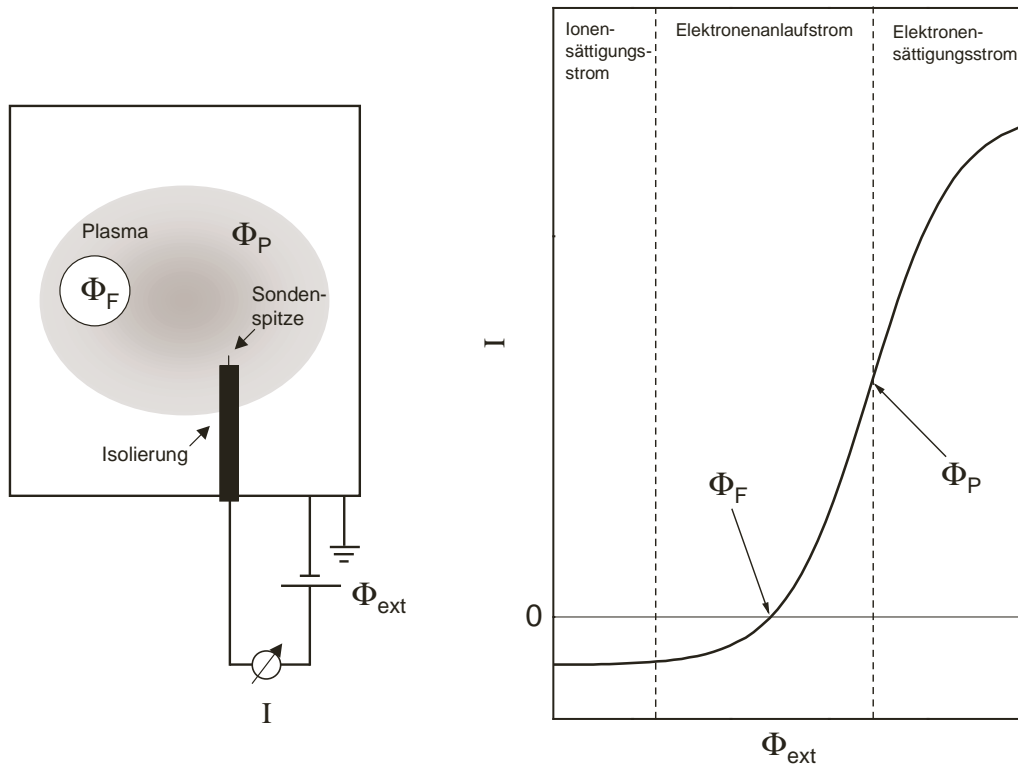


Abbildung 3.5: Aufbau und I/Φ -Kennlinie einer Langmuir-Sonde (schematisch).

innerhalb des Plasmavolumens bewegen, so können auf diese Weise orts aufgelöste Profile der Plasmaparameter gemessen werden. Als Nachteil muss gesehen werden, daß die Qualität von Sondenmessungen stark von der Art der Plasmaerzeugung und den damit verbundenen elektrischen Störeinflüssen auf die Sonde und die Anlagenelektronik abhängt.

Außerdem gibt es verschiedene Möglichkeiten, das komplizierte Verhalten der Plasmarandschicht um die Sondenspitze zu modellieren [Che74], was je nach Auswertemethode zu einer Streuung der Ergebnisse führt. Weitere Details zur Sondentheorie sowie ein Anwendungsbeispiel mit einem Niederdruckplasma findet man in [SS70] bzw. [SFAP01].

3.4.2 Mikrowelleninterferometrie

Die Mikrowelleninterferometrie stellt eine elegante Methode dar, die mittlere Elektronendichte eines Plasmas entlang eines Sichtstrahls auf nicht-invasive Art zu bestimmen. Sie nutzt die Tatsache, daß sich der Brechungsindex N_P des Plasmas mit der Elektronendichte ändert. Ein durch das Plasma geführter Messstrahl erfährt daher bei seinem Durchgang eine Phasenverschiebung. Diese kann sichtbar gemacht werden, indem man den Messstrahl mit einem Referenzstrahl zur

Interferenz bringt. Aus dem gemessenen Interferenzbildern mit und ohne Plasma lässt sich die sichtstrahlintegrierte Elektronendichte ermitteln [HW65]. Es handelt sich dabei um eine passive Methode, die das Plasma nicht stört.

In Abwesenheit von Magnetfeldern lautet die Dispersionsrelation einer elektromagnetischen Welle im Plasma

$$\omega^2 = \omega_P^2 + c^2 k^2 . \quad (3.28)$$

Dabei ist ω die Kreisfrequenz der Welle, k die Wellenzahl und

$$\omega_P = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (3.29)$$

bezeichnet die Plasmafrequenz [Che74]. Es können sich nur Wellen mit $\omega > \omega_P$ im Plasma ausbreiten. Wellen mit $\omega < \omega_P$ werden reflektiert, da die freien Elektronen im Plasma dem eingestrahlten elektrischen Wechselfeld folgen können, was für Frequenzen oberhalb der Plasmafrequenz nicht mehr der Fall ist. Der Brechungsindex lässt sich mit Hilfe dieser charakteristischen Frequenz als

$$N_P = \sqrt{1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2}} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}} \quad (3.30)$$

schreiben. Dabei ist $n_c = \epsilon_0 m_e \omega^2 / e^2$ die sogenannte „cutoff-Dichte“. Diese darf nicht überschritten werden, wenn eine externe Welle der vorgegebenen Frequenz ω das Plasma ohne Reflexion durchdringen soll.

Die resultierende Phasenverschiebung $\Delta\phi$ zwischen Mess- und Referenzstrahl erhält man aus dem Verhältnis der optischen Weglängendifferenz $\Delta\tau$ zur eingestrahlten Wellenlänge λ_0 :

$$\Delta\phi = 2\pi \frac{\Delta\tau}{\lambda_0} = \frac{2\pi}{\lambda_0} \int_0^L (N_{Vakuum} - N_P) dx = \frac{2\pi}{\lambda_0} \int_0^L \left(1 - \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}} \right) dx . \quad (3.31)$$

Dier Wurzelterm darf linearisiert werden, wenn $n_e \ll n_c$ gilt. Dies ist für die typischerweise verwendeten Frequenzen und die zu erwarteten Elektronendichten gerechtfertigt. Nimmt man außerdem eine entlang des Sichtstrahls konstante Elektrondichte an, so erhält man für die mittlere Dichte entlang des Sichtstrahls

$$n_e = \frac{\Delta\Phi \lambda_0 n_c}{\pi L} . \quad (3.32)$$

In der Praxis ist diese prinzipiell sehr einfache Methode nicht immer leicht handzuhaben, da das Interferenzsignal durch elektrische Einstreuungen und unkontrollierte Reflexionen der Mikrowelle an Teilen des Versuchsaufbaus gestört werden kann. Zusätzlich muss ein Zugang von der Größenordnung der Wellenlänge zum Plasma bestehen. Gelingt jedoch eine verwendbare Justierung des Aufbaus, so eignet sich diese Methode hervorragend um das Sichtlinienintegral der Elektronendichte zu bestimmen. Eine Entfaltung der sichtstrahlintegrierten Dichte ist allerdings nur unter zusätzlichen Annahmen über das Dichteprofil entlang des Sichtstrahls möglich.

3.4.3 Optische Emissionsspektroskopie und Stoß–Strahlungs–Modelle

Die optische Emissionsspektroskopie (OES) basiert auf der spektralen Zerlegung des Lichtes, welches das Plasma im sichtbaren Wellenlängenbereich sowie im angrenzenden ultravioletten und infraroten Spektralbereich aussendet. Dies geschieht meist durch Gitterspektrographen. Aus den Intensitäten der beobachteten Spektrallinien lassen sich weitreichende Aussagen über die Vorgänge im Plasmavolumen und verschiedenste Plasmaparameter treffen [Fan02]. Die OES unterliegt keinerlei elektromagnetischen Störeinflüssen und ist daher im Betrieb sehr robust. Allerdings liefert sie wie alle spektroskopischen Methoden sichtstrahlintegrierte Ergebnisse. Dies muss berücksichtigt werden, wenn das Plasma entlang des Sichtstrahls starke Inhomogenitäten aufweist.

Während die Durchführung einer spektroskopischen Messung experimentell relativ einfach zu realisieren ist, liegt die Schwierigkeit in diesem Fall in der Interpretation des gewonnenen Spektrums. Das eigentliche Ergebnis der Messung ist eine Information über die Besetzungen angeregter Zustände in den betrachteten Atom- und Molekülspezies. Diese Information muss im nächsten Schritt über ein geeignetes Modell in Verbindung zu den Plasmaparametern gebracht werden. Dazu verwendet man sogenannte *Stoß–Strahlungs–Modelle* (SSM).

Ein SSM betrachtet im Idealfall alle Prozesse, welche zur Be- und Entvölkerung eines gegebenen Zustandes im Plasma beitragen (siehe auch 3.2) und bilanziert diese. Im Fall von Molekülgasen (z.B. H_2) kann es sich dabei nicht nur um elektronische Zustände sondern auch um vibratorisch und rotatorisch angeregte Zustände handeln [Gre01].

Abbildung 3.6 zeigt ein Termschema mit mehreren angeregten Zuständen und den wichtigsten be- und entvölkernden Prozessen für einen der beteiligten Zustände. Die Wahrscheinlichkeit für diese Prozesse hängt direkt von den Dichten der beteiligten Teilchensorten und einem entsprechenden Ratenkoeffizienten ab. Dieser hängt im Allgemeinen von der Elektronentemperatur und eventuell weiteren Plasmaparametern ab. Aus den so gewonnenen Bilanzgleichungen und der Forderung, daß die Besetzungen der betrachteten Zustände im zeitlichen Mittel stationär sind, ergibt sich ein System gekoppelter Differentialgleichungen. Dieses legt die Gleichgewichtsdichten aller beteiligten Zustände fest.

Die Schwierigkeit liegt dabei nicht in der numerischen Lösung der Bilanzgleichungen, sondern in der zugrundegelegten Datenbasis, welche die Wahrscheinlichkeiten für die einzelnen Prozesse bestimmt. Oft sind nicht für alle benötigten Prozesse die entsprechenden Atom- oder Moleküldaten verfügbar. In diesen Fällen muß man sich mit approximativen Methoden und Skalierungsgesetzen helfen. Eine ausführliche Diskussion dieser Problematik sowie ein sehr flexibles SSM u.a. für Wasserstoffplasmen findet man in [Wün05].

Die auf diese Weise errechneten Besetzungsdichten können dann durch Variation der Plasmaparameter im Modell an die spektroskopisch gemessenen Besetzungsdichten angepasst werden. Man erhält auf diese Weise die Plasmaparameter als

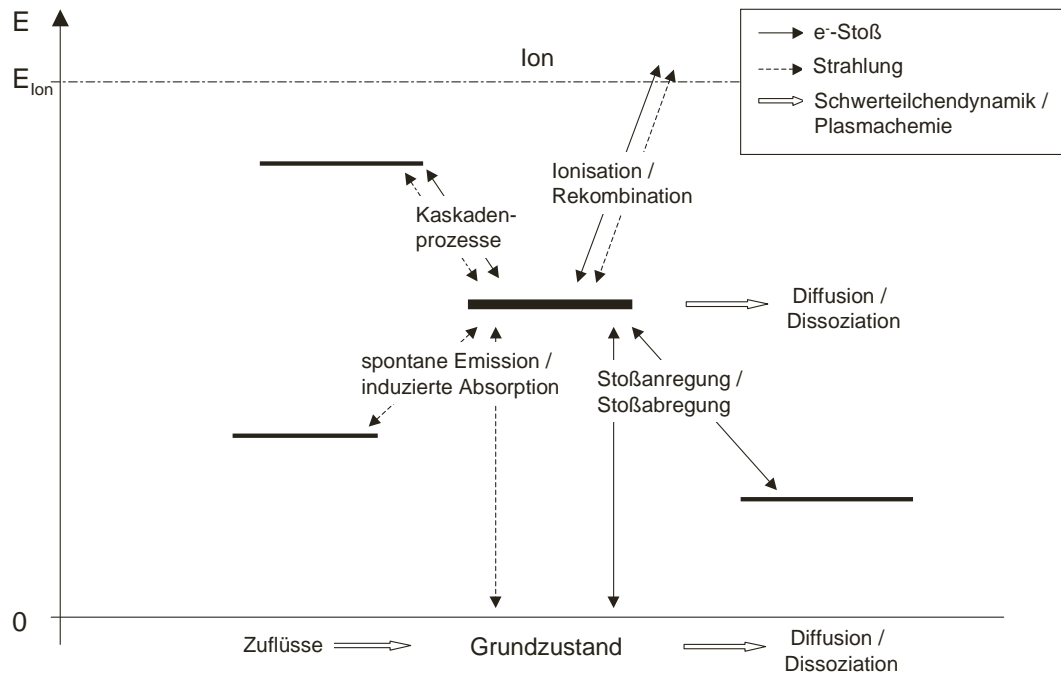


Abbildung 3.6: Grundlegende Bilanzen innerhalb eines Stoß-Strahlungs-Modells.

Ergebnis. Auf diese Weise sind z.B. in Wasserstoffplasmen T_e , n_e , n_H , n_{H_2} sowie die Vibrations- und Rotationstemperaturen des H_2 -Moleküls zugänglich [Fan02].

4 Continuous-wave-CRDS an einer Mikrowellenentladung

In diesem Kapitel geht es um die Anwendung der CRDS auf das H_3^+ -Molekülion in einer Mikrowellenoberflächenentladung. Das Experiment hat zum Ziel, die absolute Dichte des H_3^+ im Plasmavolumen in Abhängigkeit von den Entladungsparametern zu bestimmen.

Zur Dichtebestimmung soll eine Absorptionslinie des H_3^+ mit Hilfe einer wellenlängenauflösenden continuous-wave-CRDS abgetastet werden. Es handelt sich hierbei um die Linie P(3,3) der Obertonbande $3\nu_2 \rightarrow 0$ bei 6807.27 cm^{-1} . Dies entspricht einer Wellenlänge von 1469.017 nm .

Das Verfahren wurde von Macko und Plašil bereits mit Erfolg auf eine Wasserstoffentladung angewendet [MP02], allerdings war im Rahmen dieser Arbeit nur die Zeitabhängigkeit der H_3^+ -Dichte in einer rekombinierenden Entladung von Interesse und es wurden keine absoluten Dichten ermittelt. Es bleibt nach der Arbeit von Macko und Plašil also zu überprüfen, ob die *quantitative* Auswertung von Cavity-Ringdown-Messungen an H_3^+ ebenfalls sinnvolle Ergebnisse liefert und ob diese Diagnostikmethode an einem vorgegebenen Aufbau experimentell handhabbar ist.

Zunächst sollen jedoch die verwendete Plasmaquelle und der experimentelle Aufbau vorgestellt werden.

4.1 Plasmaquelle

Bei der verwendeten Plasmaquelle COMET („COaxial Microwave Experiment“) handelt es sich um eine sogenannte Duo-Plasmaline[®], wie sie am Institut für Plasmaforschung der Universität Stuttgart entwickelt wurde [Räu98]. Die Anordnung besteht aus einem zylinderförmigen Vakuumgefäß, das entlang der Zylinderachse von einem Quarzrohr abgeschlossen wird. Dieses Quarzrohr enthält eine Koaxialleitung aus einem Kupferstab als Innenleiter und einem umgebenden Kupferrohr als Außenleiter.

In diese Leitung läßt sich die Mikrowellenleistung zweier Magnetrons (P_{max} jeweils 1.2 kW bei 2.45 GHz) einkoppeln. Dies geschieht durch Rechteckhohlleiter und einen kegelförmigen Modenkonverter. Wassergekühlte Zirkulatoren minimieren die Belastung der Magnetrons durch reflektierte Leistung. Innerhalb des Vakuumgefäßes ist der Außenleiter auf einer Länge von 30 cm unterbrochen, so daß

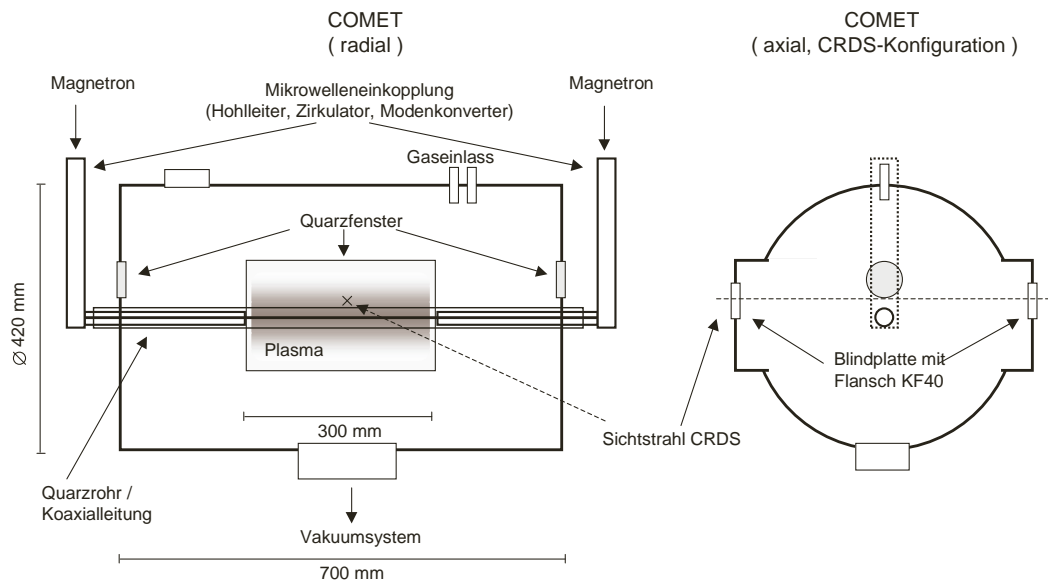


Abbildung 4.1: Aufbauschema der Mikrowellenentladung COMET. In radialer Ansicht (links) und axialer Ansicht (rechts). Die axiale Ansicht zeigt den Aufbau für die Verwendung mit CRDS und den verwendeten Sichtstrahl. Die radiale Ansicht zeigt die Konfiguration für emissionsspektroskopische Untersuchungen. Der Ort des Sichtstrahls für die CRDS ist hier angedeutet.

Plasmaparameter	typischer Bereich
p	10 – 100 Pa
T_{Gas}	500 – 1000 K
T_e	1.3 – 3.5 eV
n_e	$8 \cdot 10^{16} - 2 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$

Tabelle 4.1: Typische Plasmaparameter der Mikrowellenentladung COMET [Heg03].

die Mikrowelle durch das Quarzrohr hindurch in das evakuierte Volumen eindringen kann. Man erhält auf diese Weise eine zylinderförmige Niederdruckentladung, welche die Rolle des Außenleiters übernimmt. Diese kann je nach eingespeister Leistung, Druck und Gasart in axialer Richtung bis zu den Gefäßwänden hin brennen. Das Arbeitgas wird über kalibrierte Massendurchflussregler eingelassen. Der Totaldruck im Gefäß kann durch Drosselung der Pumpleistung mit einem Eckventil eingestellt werden. Die Plasmaquelle wird nach dem Erreichen des erwünschten Druckes im Durchfluss betrieben. Tabelle 4.1 zeigt die typischen erreichbaren Plasmaparameter.

Zu Diagnostikzwecken stehen verschiedene Zugangsflansche sowie Quarzfenster zur Verfügung. Diese lassen Sichtstrahlen in radialer und axialer Richtung durch das Plasma zu. Abbildung 4.1 zeigt den schematischen Aufbau.

Der radiale Durchmesser der Entladung hängt stark vom gewählten Druck ab. Bei 10 Pa brennt das Plasma fast bis zur Gefäßwand. Bei steigendem Druck

und sinkender freier Weglänge der Plasmateilchen zieht es sich immer stärker um das zentrale Quarzrohr zusammen. Der Druckbereich ist dabei nach unten durch den Diffusionsverlust der Plasmaionen und Elektronen hin zur Gefäßwand, sowie durch die zur Verfügung stehende Mikrowellenleistung begrenzt. Bei Drücken unterhalb von 10 Pa kann aufgrund der hohen Diffusionsverluste kein Plasma aufrechterhalten werden.

Bei Drücken oberhalb von 100 Pa bildet das Plasma nurmehr einen dünnen Schlauch um das zentrale Quarzrohr, so daß das Plasma für diagnostische Methoden nur noch eingeschränkt zugänglich ist. Außerdem unterliegt das Quarzrohr bei hohen Drücken einer starken Erwärmung. Eine detaillierte Beschreibung der sich einstellenden Feld- und Dichteverteilungen wird in [Räu98] gegeben. [Heg03] zeigt weitere Details des Aufbaus sowie eine umfassende plasmadiagnostische Untersuchung der Entladung, vor allem im Hinblick auf H_2 und D_2 .

Für den Betrieb mit CRDS als Plasmadiagnostik werden die großflächigen Beobachtungsfenster durch Blindplatten mit je einem KF-40 Diagnostikflansch ersetzt. Diese Flansche stellen einen Sichtstrahl für die CRDS zur Verfügung, der das Plasma in radialer Richtung ungefähr 2 cm über dem zentralen Quarzrohr schneidet (Abb. 4.1).

4.2 CRDS–Aufbau

Abbildung 4.2 zeigt den Aufbau der cw-CRDS am Experiment COMET. Die Anordnung folgt in Aufbau und Funktionsweise dem in Abschnitt 2.4 beschriebenen Prinzip einer cw-CRDS. Allerdings wurde auf den Aufbau einer Modenanpassungsoptik verzichtet, da sich die Fokussierung der Laserstrahlung auf eine kleine Beugungsöffnung unter den gegebenen experimentellen Bedingungen als zu instabil zeigte. Da die detektierten Signale jedoch durchwegs frei von Schwebungen sind, ist das gleichzeitige Anschwingen mehrerer Resonatormoden mit hoher Sicherheit auszuschliessen. Die verwendeten Komponenten, die Justierung des Resonators, sowie die Datenerfassung und Auswertung werden im Folgenden beschrieben.

4.2.1 Komponenten der cw-CRDS

Um die erwünschte Funktion des CRDS–Aufbaus zu erreichen, müssen die verwendeten Bauteile auf den Wellenlängenbereich des zu untersuchenden Absorptionssignals abgestimmt werden. Außerdem muss ein geeigneter Laser zur Anregung ausgewählt werden (siehe Abschnitt 2.3.3). Die für den vorliegenden Aufbau verwendeten Komponenten (in der Reihenfolge entlang des Sichtstrahls in Abb. 4.2) sind:

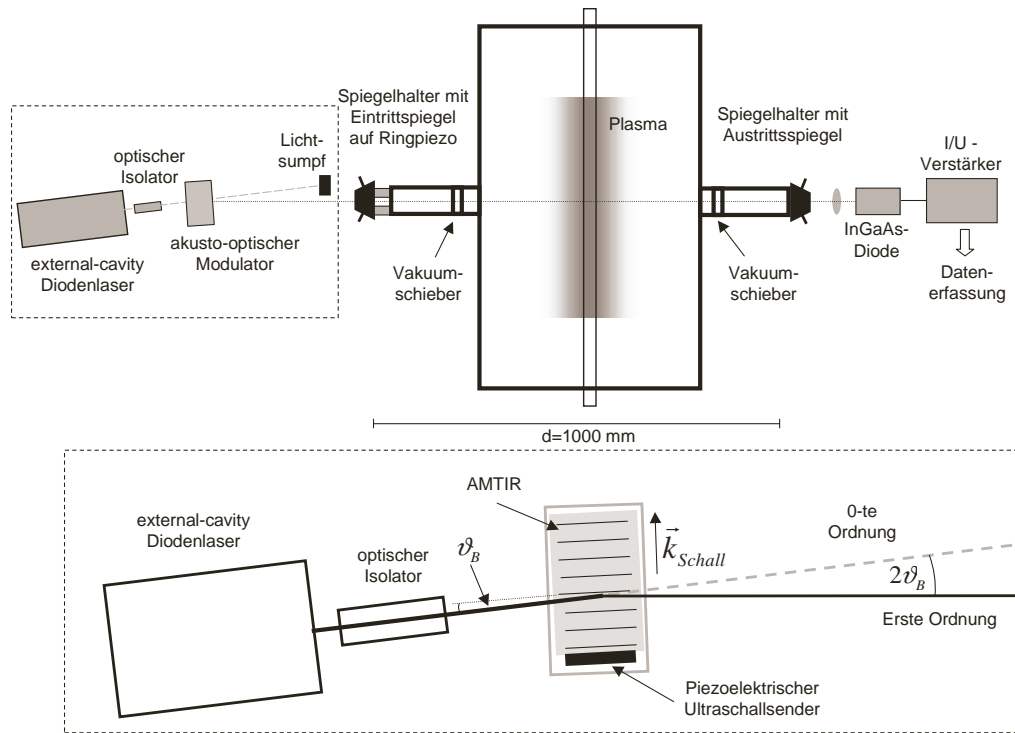


Abbildung 4.2: Oben: Aufbau der CRDS am Experiment COMET. Versorgungsgeräte sowie die Triggerlogik sind nicht dargestellt (siehe dazu Abschnitt 4.2.2). Vergrößerung unten: Anordnung zur Schaltung des anregenden Lasers mit Hilfe des AOM (Winkel aus Gründen der Darstellung übertrieben).

- Laser:** Zur Anregung des Resonators wird ein Diodenlaser vom Typ TEC-500 (Sacher Lasertechnik) verwendet. Dabei handelt es sich um einen external-cavity-Laser in Littman-Konfiguration. Bei diesem Aufbau wird das von der Laserdiode emittierte Licht auf ein Beugungsgitter kollimiert. Die erste Beugungsordnung des Laserlichtes trifft auf einen Spiegel und wird auf das Gitter zurückreflektiert. Die erste Beugungsordnung des rückreflektierten Lichtes tritt wiederum in die Laserdiode ein. Durch die Rückkopplung schwingt die Laserdiode extrem schmalbandig um die durch den externen Resonator selektierte Wellenlänge an. Diese Wellenlänge kann grob durch mechanische Verkipfung des Reflexionsspiegels eingestellt werden. Die Feinstimmung der emittierten Wellenlänge geschieht durch eine piezoelektrische Verkipfung des Spiegels. Der Nutzstrahl wird über die nullte Beugungsordnung des Beugungsgitters ausgekoppelt. Man erreicht auf diese Weise eine Ausgangsleistung von ca. 5 mW. Die Lasersteuerung stellt einen Bereich von 0–100V Piezospannung am Reflexionsspiegel des externen Resonators zur Verfügung, was einen Abstimmbereich von ca. ± 0.5 nm um die Zentralwellenlänge von 1469 nm ergibt. Zur Wellenlängenstabilisierung ist außerdem eine Strom- und Temperaturstabilisierung der Laserdiode notwendig, welche ebenfalls durch die Laser-

steuerung zu Verfügung gestellt wird.

Die spektrale Halbwertsbreite des emittierten Lichtes liegt laut Herstellerangabe bei einigen MHz, also weit unter dem freien Spektralabstand eines typischen Ringdown-Resonators. Damit ist der Laser als Anregungsquelle für CRDS sehr gut geeignet. Im praktischen Betrieb ergeben sich allerdings Probleme, da das empfindliche Zusammenspiel aus Stromstabilisierung, Temperaturstabilisierung und der eingeschränkten mechanischen Reproduzierbarkeit der Piezoabstimmung eine absolute Wellenlängenzuordnung erschwert. Außerdem kann der externe Resonator in verschiedenen Moden gleichzeitig anschwingen oder zwischen diesen wechseln, so daß der Laser mehrere Wellenlängen gleichzeitig emittieren kann. Auf diese Problematiken wird im Abschnitt 4.3.1 nochmals eingegangen.

- *Optischer Isolator*: Der optische Isolator verhindert die Rückkopplung von Licht aus dem Aufbau in den Laser. Diese könnte zu einer Störung der Wellenlängenselektion im externen Resonator führen. Der Isolator ist als sogenannter Faraday-Isolator ausgeführt. Dabei wird das in Durchlassrichtung eingestrahlte Licht linear polarisiert. Die Polarisationsrichtung wird durch einen optisch aktiven Kristall um 45° gegenüber dem Polarisator weitergedreht und verläßt das Bauteil über einen Analysator mit entsprechender Durchlassrichtung. Rückwärtig eingestrahktes Licht wird im Analysator unter 45° relativ zum Eingangspolarisator polarisiert. Es unterliegt beim Durchgang durch den Kristall einer weiteren Drehung der Polarisationsrichtung um 45° und erreicht den Eingangspolarisator somit in Sperrrichtung.
- *Akusto-optischer Modulator (AOM)*: Um das Abklingen des Messresonators ungestört detektieren zu können, muss die Anregung durch den Laser während des Ringdown-Vorgangs abgeschaltet werden. Dies muss auf einer Zeitskala geschehen, welche kurz im Vergleich zur erwarteten Abklingzeit ist. Eine Abschaltung der Laserdioden kommt aufgrund des Nachleuchtens der Diode und der zum Betrieb notwendigen Stromstabilisierung nicht in Frage. Daher muss der anregende Laserstrahl während des Messvorganges durch einen externen Modulator unterdrückt werden.

Im nahen infraroten Spektralbereich kann dies durch einen akusto-optischen Modulator geschehen. Der verwendete Modulator (Polytec GmbH) besteht im Kern aus dem Material „AMTIR I“. Dabei handelt es sich um eine amorphe GeAsSe-Glasphase. Dieses Material transmittiert Strahlung im Wellenlängenbereich von $1\ \mu\text{m}$ bis ca. $14\ \mu\text{m}$. Durch einen piezoelektrischen Schallwandler kann der AMTIR-Block mit einer Frequenz von 40kHz angeregt werden. Im Block bildet sich dann eine stehende Schallwelle, welche eine stehende Ladungsdichtewelle der selben Wellenlänge im Material hervorruft.

Diese Ladungsdichtewelle wirkt als Beugungsgitter für einfallende Strahlung. Fällt Strahlung relativ zu den Wellenfronten unter dem Bragg-Winkel θ_B in das akustisch angeregte Material ein, so wird diese in die erste Ordnung gebeugt und verläßt den Modulator unter dem Winkel $2\theta_B$ relativ

zum einfallenden Strahl. Man erreicht dabei bei idealer Justierung eine Beugungseffizienz von ca. 90%. Für die verwendete Laserwellenlänge und Anregungsfrequenz beträgt θ_B ungefähr 0.7° (Abb. 4.2). Wird die Ultraschallanregung abgeschaltet, so wird der gesamte Strahl in nullter Ordnung transmittiert und kann auf eine geschwärzte Blende geleitet werden. Die Schaltung des Modulators ist über einen Triggereingang an der Modulatorversorgung möglich. Als Arbeitsstrahl dient die erste Beugungsordnung, da sie im Gegensatz zur nullten Ordnung komplett abschaltbar ist.

Die minimale Schaltzeit ist durch die Dauer gegeben, welche die Schallwelle zum Durchlaufen des Strahldurchmessers im Modulormaterial benötigt. Die Schallgeschwindigkeit in AMTIR beträgt laut Hersteller $v_{Schall} = 2480$ m/s. Bei einem Strahldurchmesser von $d_{Strahl} \simeq 2$ mm ist die Schaltzeit also $d_{Strahl}/v_{Schall} \simeq 0.8 \mu\text{s}$. Diese Abschätzung befindet sich in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert von ca. $1 \mu\text{s}$. Diese Abschaltzeit genügt, um den Ringdown-Vorgang ungestört beobachten zu können.

Um den Winkel des AOM relativ zum einfallenden Strahl justieren zu können, ist der AOM drehbar in einem Federzug mit Mikrometerschraube gelagert. Hält man vorübergehend eine zusätzliche Detektordiode zur Kontrolle der gebeugten Lichtleistung in den Strahlengang, so kann der optimale Deflektionswinkel eingestellt werden.

- *Resonatorspiegel*: Bei den Resonatorspiegeln handelt es sich um dielektrisch beschichtete Spezialspiegel (LosGatos Research) auf Quarzsubstrat, welche für verschiedene Zentralwellenlängen lieferbar sind. Sie besitzen einen Substratdurchmesser von einem Zoll und einen Krümmungsradius der hochreflektiven Seite von einem Meter. Zum Einsatz kommen Spiegel mit einer Reflektivität von nominal 99.99% bei 1500 nm. Wird ein Spiegelpaar im gereinigten Zustand an das Experiment angebaut, so erreicht man unter Vakuum eine intrinsische Abklingzeit von $\tau_0 \simeq 30 \mu\text{s}$ bei einem Spiegelabstand von 100 cm, welche im Plasmabetrieb auf $\tau_0 \simeq 20 \mu\text{s}$ fällt, jedoch dann stabil bleibt. Dies entspricht laut (2.12) einer gemessenen Reflektivität von $R=99.983\%$. Dieser Wert ist zufriedenstellend, da die Spiegel ca. 30 nm außerhalb der Referenzwellenlänge betrieben werden und außerdem einer Verschmutzung durch Teilchen aus dem Plasmavolumen unterliegen. Die Spiegel sind auf der Substratrückseite mit einer Antireflexbeschichtung versehen, um die Einkopplung der Laserleistung zu optimieren.
- *Spiegelhalter*: Beide Resonatorspiegel liegen mit der hochreflektiven Seite auf einem O-Ring auf, so daß die Spiegel selbst das Vakuum der Plasmagefäßes abschließen. Die Rückseite der Spiegel liegt in einem Kupfering, welcher durch drei Mikrometerschrauben gehalten wird. Der Ring bietet eine Apertur von ungefähr einem Zentimeter zur Einstrahlung oder Detektion von Strahlung entlang der Resonatorachse. Die Mikrometerschrauben schließen zueinander einen Winkel von 120° ein. Die Neigung der Spiegel zur Resonatorachse kann so an den Mikrometerschrauben feinjustiert werden.

- *Piezostufe*: Am Eintrittsspiegel ist zwischen der Spiegelrückseite und dem Kupferring ein Ringpiezokristall eingeklemmt, um die Resonatorlänge modulieren zu können. Dies ist notwendig, um den Resonator periodisch in Resonanz zum anregenden Laserlicht zu bringen. Die Modulation geschieht über einen Funktionsgenerator, der über einen Spannungsverstärker den Piezokristall ansteuert. Die Auslenkung erfolgt sinusförmig bei einer Frequenz von 15 Hz. Damit ist sichergestellt, daß der Eintrittsspiegel auf der Zeitskala einer Ringdown-Messung als fest angesehen werden kann (siehe Abschnitt 2.4). Die Amplitude der Modulation ist von untergeordneter Bedeutung, solange mindestens eine Wellenlänge der verwendeten Laserstrahlung durchfahren wird.
- *Detektorsystem*: Das durch den Austrittsspiegel transmittierte Licht wird über eine Quarzlinse auf eine InGaAs-Photodiode (Laser Components C30641G) mit einer aktiven Fläche von 1 mm^2 abgebildet. Diese Dioden haben im relevanten Wellenlängenbereich eine Photoeffizienz von ungefähr 0.8 und können schwache IR-Signale ohne zusätzliche Kühlung messen. Der Photostrom aus der Diode wird über einen Transimpedanzverstärker (femto Messtechnik DHPCA-100) aufbereitet, und so auf eine Ausgangsspannung von 0–1 V abgebildet. Der Verstärker bietet Verstärkungen von 10^2 V/A bis 10^8 V/A . Im Messbetrieb wird eine Verstärkung von 10^5 V/A verwendet. Im Justierbetrieb ist das Aufsuchen des Signals mit höheren Verstärkungen jedoch nützlich. Die Verstärkerbandbreite ist zur Dämpfung des Frequenzrauschens auf 1 MHz begrenzt. Das aufbereitete Signal wird einerseits von einer A/D-Wandlerkarte (GageScope 50) im Messrechner mit einer Abtastfrequenz von 50 MHz und einer Dynamik von 12 bit digitalisiert, andererseits dient es zur Ansteuerung der Triggerlogik. Die Versuchssteuerung und Auswertung wird in Abschnitt 4.2.2 beschrieben.

4.2.2 Steuerung, Datenerfassung und Auswertung

Um die automatisierte Aufnahme von CRD-Spektren zu ermöglichen, wurde die CRDS-Anlage weitestgehend über einen Messrechner mit der selbstentwickelten Software CRIMES („Cavity Ringdown Measurement Software“) automatisiert. Abbildung 4.3 zeigt das entsprechende Blockdiagramm. Ausgangspunkt des Signalweges ist der I/U-Verstärker, welcher ein Spannungssignal proportional zur durch den Messresonator transmittierten Leistung ausgibt. Dieses wird sowohl an eine A/D-Karte im Messrechner (50 MHz Abtastfrequenz, 12 bit Dynamik) und einen Triggergenerator weitergeleitet. Der Triggergenerator stellt die Schaltzentrale der CRD-Messung dar. Überschreitet das Eingangssignal einen manuell wählbaren Schwellwert (0–1 V), so stellt der Triggergenerator die Steuerspannung am AOM-Treiber auf null. Dadurch erlischt die erste Beugungsordnung hinter dem AOM und es findet keine weitere Anregung des Resonators statt. Gleichzeitig wird die Datenerfassung getriggert, welche nun das Ringdown-Signal

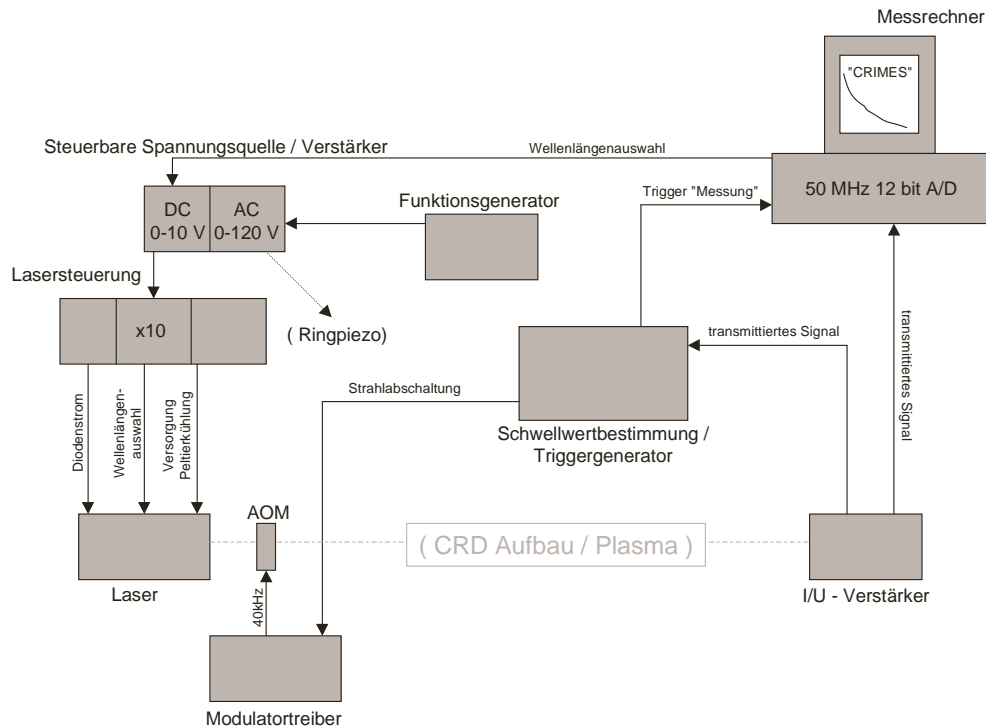


Abbildung 4.3: Blockdiagramm der CRDS–Anlage an COMET. Plasmagefäß und Resonator sind nicht eingezeichnet.

aus dem Resonator aufzeichnet. Nach $250\ \mu\text{s}$ wird die Steuerspannung für den AOM wieder freigeschaltet, der Resonator wird erneut angeregt und die nächste Messung kann erfolgen.

Über den Messrechner kann außerdem die Emissionswellenlänge des Diodenlasers verändert werden, um eine spektrale Auflösung der Messung zu erreichen. Dazu dient eine steuerbare Gleichspannungsquelle, welche die Steuerspannung für den externen Resonator des Diodenlasers erzeugt (siehe Abschnitt 4.2.1). Über einen Funktionsgenerator und einen AC–Spannungsverstärker wird der Ringpiezo zur Resonanzanpassung getrieben. Dieser läuft unabhängig von der restlichen Anlagensteuerung.

Abbildung 4.4 zeigt eine Bildschirmkopie des Messprogrammes CRIMES. An jedem Punkt des Spektrums wird eine frei wählbare Anzahl von Messungen durchgeführt und gemittelt (Steuerfeld *Aquisition*). Im Steuerfeld *Spectrum Aquisition* können Start– und Endspannung des Wellenlängenscans sowie die Schrittweite hinterlegt werden. Ist die Messung an einem Punkt des Spektrums durchgeführt, wird die mittlere Abklingzeit zusammen mit der Steuerspannung zur späteren Weiterverarbeitung abgespeichert. Das in Abb. 4.4 dargestellte Signal zeigt eine intrinsische Abklingzeit des Resonators von ungefähr $21\ \mu\text{s}$.

Da der Aufbau Vibrationen durch das Vakuumsystem sowie äußeren elektrischen Störungen ausgesetzt sein kann, ist ein kleiner Anteil der gemessenen Ringdown–

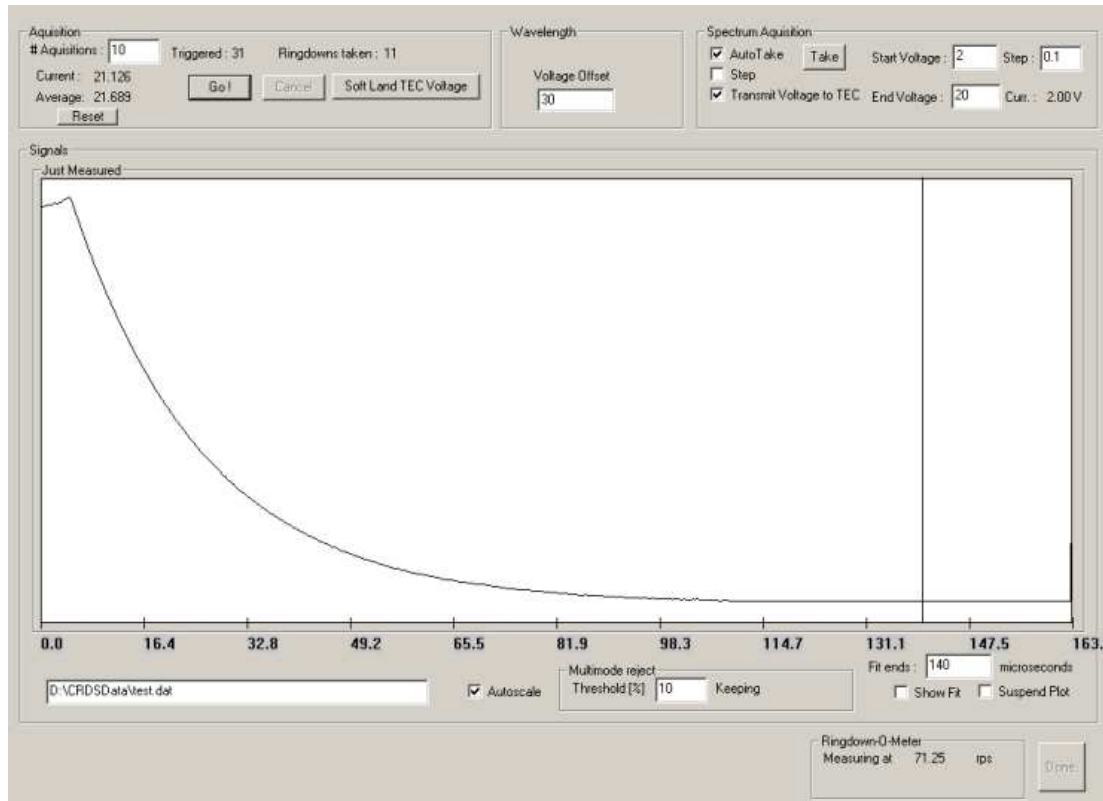


Abbildung 4.4: CRDS-Messsoftware CRIMES während einer Leermessung des Resonators. Das dargestellte Signal entspricht einer intrinsischen Abklingzeit von ungefähr $21 \mu\text{s}$. Man erkennt das Schalten des Modulators ungefähr $5 \mu\text{s}$ nach Beginn der Datenerfassung, danach beginnt der Ringdown-Vorgang.

Signale nicht zur Auswertung verwendbar. Springt zum Beispiel der Resonator während des Messvorganges in eine andere Mode oder treten elektrische Störungen des Signals auf, so können einzelne Ringdown-Vorgänge mit stark abweichenden Abklingzeiten oder stark gestörtem Signalverlauf auftreten. Diese lassen sich filtern, indem man ein Gültigkeitsintervall um die momentane mittlere Abklingzeit definiert. Die Breite dieses Intervalls als Bruchteil der mittleren Abklingzeit kann im Steuerfeld *Multimode Reject* angegeben werden. Messwerte außerhalb dieses Intervalls werden verworfen, so daß der Mittelwert der Abklingzeit nicht durch Fehlmessungen verfälscht wird. Wählt man das Intervall in geeigneter Weise, d.h. hinreichend überhalb der Streuung zwischen zwei ungestörten Ringdown-Vorgängen, jedoch deutlich unterhalb von 100%, so wird eine ausreichende Filterung von äußeren Störeinflüssen erreicht. Ein typischer Wert von 10% hat sich in der Praxis bewährt. Es ist zu beachten, daß diese Filterung nur innerhalb des aktuell angesteuerten Wellenlängenpunktes gilt. Wird die Wellenlänge verändert, so bezieht sich das Gültigkeitsintervall wiederum auf die dort gemessene mittlere Abklingzeit.

Die Abklingkonstanten werden über einen exponentiellen Fit erster Ordnung numerisch ermittelt. Dabei handelt es sich um einen continuous-integration-

Algorithmus, welcher speziell für die Auswertung von CRD–Messungen optimiert wurde [HvBHM04]. Als Rückgabewerte erhält man die Parameter a, b und c für eine Funktion der Form

$$f(t) = a \cdot e^{-b \cdot t} + c \quad (4.1)$$

wobei $1/b$ die gesuchte Abklingzeit des Signals ist. Die Gesamtamplitude a und ein eventuell vorhandenes Spannungsoffset c sind für die Auswertung nicht von Bedeutung. Allerdings ist die Berücksichtigung des Spannungsoffsets durch die Fitroutine von praktischem Nutzen, da konstante Offsetsignale (u.a. das Eigenleuchten des Plasmas im infraroten Spektralbereich) somit keinen Einfluß auf die ermittelten Abklingzeiten haben.

Die Software stellt außerdem weitere Einstellungen, z.B. für Betriebsmodi ohne Wellenlängenvariation zu Verfügung. Dies ist für Justierarbeiten an der Anlage nützlich.

Die Anlage erzielt bei optimaler Justierung eine maximale Repetitionsrate von ungefähr 300 Hz.

4.2.3 Justierung

Die Justierung der Anlage geschieht in zwei Schritten: Als erstes muss der anregende Laserstrahl kollinear zur Resonatorachse ausgerichtet werden. Dann müssen die Spiegel angebracht und so ausgerichtet werden, daß sie einen stabilen Resonator für die einfallende Strahlung bilden. Dies wird durch die Tatsache erschwert, daß der Laser im nahen Infrarot strahlt und somit für das menschliche Auge unsichtbar ist.

Zur Justierung des Laserstrahls wird der Detektor entfernt und durch einen HeNe–Laser ersetzt, welcher sichtbare Strahlung bei einer Wellenlänge von 633nm emittiert. Anstatt des Eintritts– und Austrittsspiegels werden Lochblenden mit einem bzw. zwei Millimeter zentraler Apertur in die Spiegelhalter eingesetzt. Die Position des Justierlasers wird so eingestellt, daß er den Resonator entlang der durch die Lochblenden definierten Achse durchstrahlt. Vor der Spiegelhalterung des Eintrittsspiegels und vor dem akusto–optischen Modulator wird nun jeweils eine weitere Lochblende aufgestellt. Diese werden so justiert, daß sie den Strahl des Justierlasers ebenfalls passieren lassen. Der Justierlaser kann dann abgebaut und wieder durch die Detektordiode ersetzt werden, da die Lage der Resonatorachse im Raum durch die Lochblenden definiert ist.

Der anregende Diodenlaser ist zusammen mit dem optischen Isolator und dem AOM auf einem gemeinsamen Modul montiert, so daß der Arbeitsstrahl (die erste Beugungsordnung des AOM) im Raum bewegt werden kann, ohne daß sich die relativen Positionen von Laser, Isolator und Modulator zueinander ändern. Der Arbeitsstrahl wird durch die Lochblenden und den Resonator zurück auf den Detektor justiert, wobei die Blende mit der kleineren Apertur im Spiegelhalter des Eintrittsspiegels verwendet wird. Der Strahl läßt sich verfolgen, indem man eine fluoreszierende Justierkarte in den Strahlengang hält, welche im Auftreffpunkt

des IR-Lasers rot aufleuchtet.

Nun wird das Detektorsystem mit einer I/U-Verstärkung von 10^2 V/A in Betrieb genommen. Die Detektorposition wird auf maximalen Photostrom an der Detektordiode eingestellt, wobei das Signal über eine Linse auf die aktive Fläche der Diode abgebildet wird. Damit ist die Justierung von Laser und Detektor entlang der Resonatorachse abgeschlossen.

Im nächsten Schritt kann mit dem Anbringen der Resonatorspiegel begonnen werden. Man bringt zwischen AOM und dem Spiegelhalter des Eintrittsspiegels eine fluoreszierende Justierkarte mit einer Bohrung von ca. 2 Millimetern Durchmesser als Lochblende ein, so daß der Laser die Blende durchstrahlt. Dies kann durch Beobachtung des Detektorsignals sichergestellt werden. Die fluoreszierende Seite der Karte weist dabei in Richtung zum Detektor. Nun kann der Austrittsspiegel montiert werden. Mit Hilfe der Mikrometerschrauben an der Spiegelhalterung wird die Neigung des Austrittsspiegels variiert, bis der rückreflektierte Laserstrahl auf der Justierkarte sichtbar wird. Der Austrittsspiegel wird dann derart justiert, daß der Reflex zurück in die Öffnung in der Justierkarte fällt. Somit ist sichergestellt, daß der Austrittsspiegel den anregenden Laserstrahl in sich selbst zurückreflektiert.

Es ist ratsam zu überprüfen, ob sich der Reflex in alle Richtungen ein Stück über die Öffnung hinweg bewegen läßt ohne zu verschwinden. Dies stellt sicher, daß man mit der direkten Reflexion des Austrittsspiegels arbeitet, da der Strahl auch über Reflexionen an Teilen des Versuchsaufbaus auf die Justierkarte gelangen kann. Dann wird der Eintrittsspiegel mit Ringpiezo montiert. Der Reflex der Eintrittsspiegelmückseite wird ebenfalls in die Öffnung in der Justierkarte zurückjustiert. Die Justierkarte kann entfernt werden, da sich die Spiegel jetzt bereits nahe der Resonanzposition befinden.

Das endgültige Ringdown-Signal kann dann gesucht werden, indem die Datenerfassung, die Signalauswertung und die Ansteuerung des Ringpiezo gestartet werden. Dabei wählt man am Anfang eine hohe Verstärkung des Diodenstromes (10^7 V/A). Man korrigiert die Neigung des Eintrittsspiegels solange in kleinen Schritten, bis die durch den Resonator transmittierte Leistung sprunghaft ansteigt. Dann ist die Resonanzposition erreicht. Die Feinjustage wird vorgenommen, indem man versucht, Signale mit immer kleinerer Verstärkung des Diodenstromes zu erhalten.

Geht die Resonanzposition des Eintrittsspiegels völlig verloren, so kann dieser jederzeit durch Einsetzen der Justierkarte wieder korrigiert werden, was mit dem Austrittsspiegel nicht möglich ist. Daher sollten alle Einstellungen am Eintrittsspiegel vorgenommen werden. Der Austrittsspiegel befindet sich meist nach der Justierung der Rückreflexion bereits nahe seiner endgültigen Position, da die Winkelpositionierung aufgrund des größeren Abstandes zur Justierkarte empfindlicher und damit exakter ist.

Mit diesem Verfahren konnte der CRDS-Aufbau in der Praxis stets reproduzierbar justiert werden, und zeigte sich auch stabil gegenüber der thermischen Ausdehnung der Experimentbauteile im Betrieb. Man erkennt zwar eine deutliche Drift der gemessenen Abklingzeiten während der Erwärmung des Aufbaus,

das Signal geht jedoch niemals verloren. Dies wird erreicht, indem die beiden Rohrstücke mit den Spiegelhaltern möglichst starr zueinander direkt am Plasmagefäß angeflanscht werden. Ein leichter Verzug der gesamten Anordnung relativ zum Laserstrahl ist bei guter Justierung unkritisch, da der Resonator aus der divergent einfallenden Strahlung selbstständig den Teilstrahl parallel zur eigenen Achse selektiert, solange die Spiegel selbst nicht gegeneinander verkippfen.

4.2.4 Testmessungen an Wasserdampf

Wasserdampf eignet sich hervorragend als Kalibriergas, da H_2O eine hohe Dichte an Absorptionslinien im nahen infraroten Spektralbereich besitzt. Die Richtigkeit der von der Anlage gemessenen Linienprofile sowie der Linienintegrale kann also anhand eines Wasserspektrums überprüft werden. Referenzspektren des H_2O –Moleküls wurden zu diesem Zweck der HITRAN04–Datenbasis entnommen [Ra05]. Um das Plasmagefäß mit Wasserdampf zu befüllen, wird über ein Nadelventil die Verbindung zu einem mit Wasser gefüllten Erlenmeyer–Kolben hergestellt. Dieser wird durch das Vakuumsystem des Plasmagefäßes evakuiert, bis die flüssige H_2O –Phase zu sieden beginnt. Der Totaldruck an H_2O im Plasmagefäß kann dann durch Drosselung der Pumpleistung am Eckventil des Vakuumsystems eingestellt werden.

Abbildung 4.5 zeigt ein gemessenes CRD–Spektrum von H_2O im Vergleich mit dem von HITRAN04 erzeugten Referenzspektrum für eine Gastemperatur von 300 K. Diese legt über die Doppler–Verbreiterung

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda_0}{c} \sqrt{\frac{8 \ln 2 k_B T}{m}} \quad (4.2)$$

der Absorptionslinien die zu erwartende Halbwertsbreite der gemessenen Signale fest. Eine Druckverbreiterung der Linien spielt im vorliegenden Druckbereich keine Rolle. Sowohl die Flächenverhältnisse der Absorptionslinien als auch die Linienprofile werden durch die CRDS–Messung hervorragend wiedergegeben. Da die Wellenlängen der H_2O –Absorptionslinien aus der Moleküldatenbank bekannt sind, können aufgenommene Wasserspektren auch zur Wellenlängenkalibrierung des Lasers verwendet werden. Allerdings beeinflusst in der Anlage verbleibendes Wasser als Verunreinigung die zu untersuchenden Plasmen, so daß eine Kontamination der Plasmagefäßes mit Wasser minimiert werden sollte.

4.2.5 Wellenlängenkalibrierung

Als Anregungsquelle für die CRDS dient ein Diodenlaser mit externem Littman–Resonator, wie in Abschnitt 4.2.1 beschrieben. Dort wurde bereits auf die Problematik hingewiesen, einer Steuerspannung am externen Resonator des Lasers die tatsächliche absolute Wellenlänge zuzuordnen.

Die Emissionswellenlänge des Lasers hängt empfindlich vom Diodenstrom, der

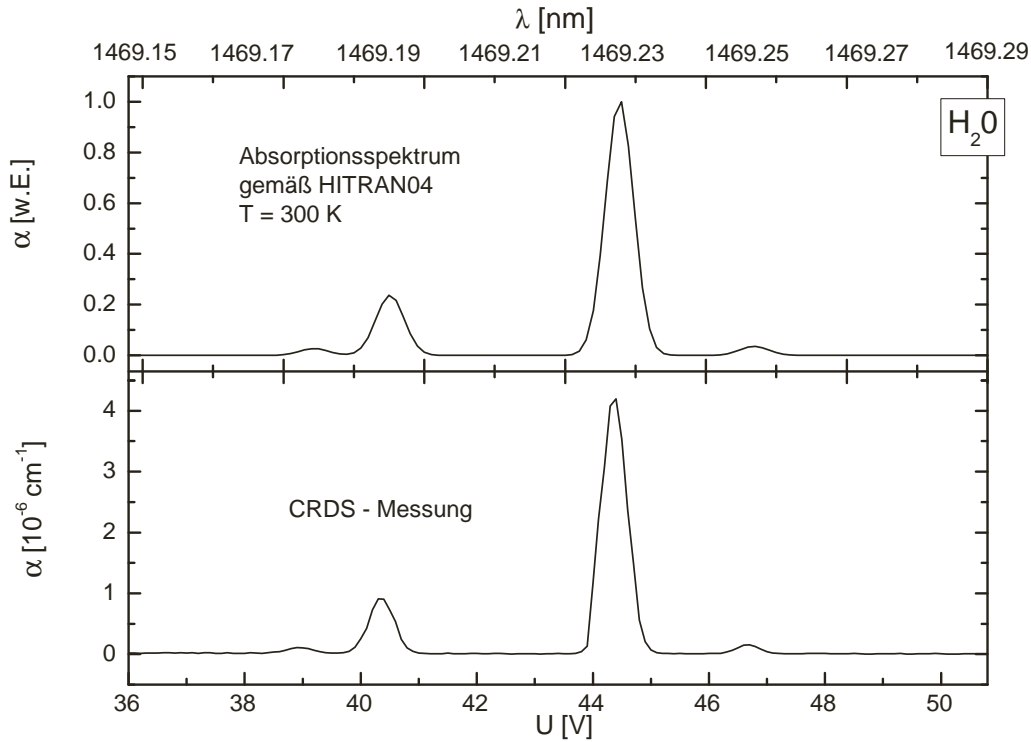


Abbildung 4.5: Ausschnitt aus dem Absorptionsspektrum des Wassermoleküls gemäß der Datenbasis HITRAN04 (oben) und gemessenes Ringdown-Spektrum (unten) bei einem Fülldruck von ca. 30 Pa.

Diodentemperatur und Gitterstellung des externen Resonators ab. Da vor allem die Gitterposition nicht beliebig exakt reproduzierbar ist und das rückgekoppelte System aus Laserdiode und externem Resonator beim Durchstimmen der Wellenlänge zu plötzlichen Modensprüngen neigt, ist eine Zuordnung der Wellenlänge zur angelegten Steuerspannung in der Praxis sehr schwierig.

Um das gewünschte Ringdown-Signal des H_3^+ -Moleküls aufnehmen zu können, muß die entsprechende Wellenlänge im Scanbereich des anregenden Diodenlasers liegen. Dabei muß gefordert werden, daß der externe Resonator des Diodenlasers innerhalb des Scanbereiches modensprungfrei arbeitet, um die Vergleichbarkeit der bei verschiedenen Wellenlängen gemessenen Abklingzeiten zu gewährleisten. Diese Forderung kann durch geeignete Justierung des Diodenkollimators und des Resonatorgitters erreicht werden, beschränkt den zur Verfügung stehenden Durchstimmbereich jedoch auf ca. 20 V um eine gewählte Offsetspannung. Dies entspricht einem Wellenlängenintervall von ungefähr 200 pm um die entsprechende Zentralwellenlänge.

Zur Kontrolle der vom Laser emittierten Wellenlänge wird dieser auf eine Glasfaser abgebildet, welche an ein Spektrometer angeschlossen ist. Dabei handelt es sich um ein 1 m – Gitterspektrometer in Czerny–Turner-Konfiguration mit einer CCD-Kamera als Detektor. Die Quanteneffizienz der Kamera ist im Wellenlängenbereich um $1.5\text{ }\mu\text{m}$ nur noch gering, genügt jedoch, um die Laserlinie

detektieren zu können. Um eine möglichst gute Wellenlängenzuordnung im betreffenden Spektralbereich zu erhalten, wurden Referenzspektren einer Neon–Spektrallampe aufgenommen. Diese besitzt Emissionslinien mit exakt bekannter Wellenlänge im Bereich um 735 nm, deren zweite Beugungsordnung bei den entsprechenden doppelten Wellenlängen im Bereich um 1470 nm detektiert werden kann. Daraus läßt sich eine absolute Wellenlängenkalibrierung für den relevanten Spektralbereich ableiten.

Allerdings ist zu beachten, daß die Zuordnung der Wellenlänge durch eine Messung in der Umgebungsluft geschieht, die Absorption in einem Niederdruckplasma jedoch praktisch im Vakuum stattfindet. Dies hat zur Folge, daß sich die Wellenlänge der anregenden Laserstrahlung beim Eintritt in das Plasmagefäß um den Brechungsindex der Umgebungsluft erhöht.

Der Brechungsindex von Luft wurde für die gegebenen Bedingungen mit Hilfe der Ciddor–Gleichung zu $n_{Luft} = 1.000268$ ermittelt [Cid96]. Für eine Wellenlänge von 1469.017 nm ergibt sich daraus eine Wellenlängenänderung von ca. 400 pm. Die Verschiebung entspricht also bereits dem doppelten gesamten Scanbereich der CRD–Messung. Daher muss der Scanbereich des Lasers um die entsprechend kürzere Zentralwellenlänge von 1468.62 nm festgelegt werden.

Abbildung 4.6 zeigt die mit dem Spektrometer detektierten Wellenlängen für verschiedene Spannungen und die daraus ermittelte Wellenlängenkalibrierung um 1468.62 nm. Die Wellenlänge ist innerhalb des Scanbereichs eine lineare Funktion der Piezospannung mit einer Steigung von ca. 9 pm/V. Abweichungen vom linearen Verlauf treten immer dann auf, wenn die Wellenlängenänderung gerade *nicht* ausreicht, um den nächsten Detektorpixel zu erreichen. Sie werden somit durch die begrenzte Wellenlängenauflösung des Spektrometers bedingt. Außerdem erkennt man deutlich eine Hysterese der Piezomechanik von ca. 5 V beim Wechsel der Scanrichtung. Für Messungen wird standardmässig der Scan aufwärts verwendet. Die Genauigkeit dieses Verfahrens ist zwar durch die mechanische Wiederholbarkeit der Gitterpositionierung im Spektrometer sowie im externen Resonator des Lasers begrenzt, erweist sich jedoch in der Praxis als ausreichend, um die Zielwellenlänge innerhalb des Scanbereichs zu halten.

4.2.6 Massenspektrometrie

In Wasserstoffplasmen können verschiedene Anteile von Ionen (im Wesentlichen $H_{x=1,2,3}^+$ und H^-) vorliegen. Darüber hinaus können sich weitere Ionensorten aus Verbindungen von Wasserstoff mit eventuellen Beimischungen oder Verunreinigungen bilden.

Um die Ionenzusammensetzung in den untersuchten Plasmen unabhängig von der CRDS zu überprüfen, stand ein energieauflösendes Massenspektrometer vom Typ Balzers PPM421 zu Verfügung. Hierbei handelt es sich um ein differentiell gepumptes Quadrupolmassenspektrometer, in welches die Ionen und Neutralteilchen aus dem Plasma durch eine Blende mit 100 μm Durchmesser eindringen können. Diese Blende befindet sich bei gleicher axialer Position ca. 3 cm über

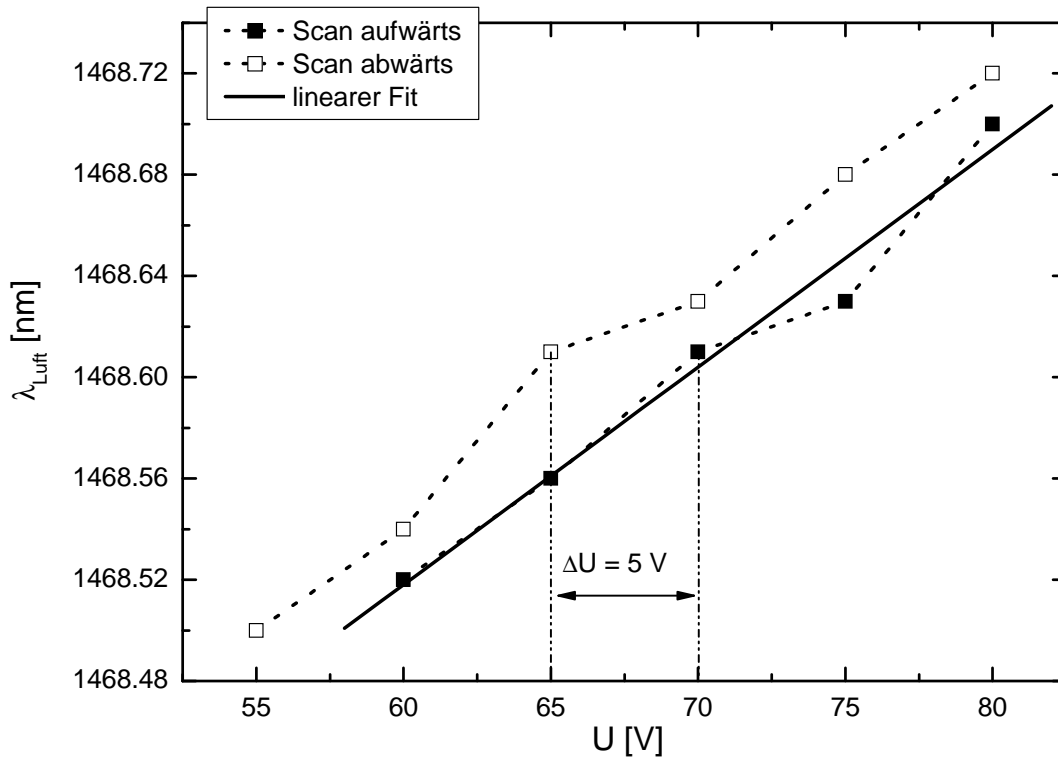


Abbildung 4.6: Wellenlängenkalibrierung des Scanbereichs um 1468.62 nm Wellenlänge an Luft mit Hilfe des Gitterspektrometers. Der eingezeichnete lineare Fit entspricht der Funktion $\lambda(U) = 1468.002 \text{ nm} + 0.0086 \text{ nm/V} \cdot U$.

dem Sichtstrahl des CRDS-Aufbaus. Im Massenspektrometer müssen die Plasmateilchen einen Energiefilter und einen Massenfilter passieren um schließlich detektiert zu werden. Mit dieser Anordnung kann sowohl das Ionenmassenspektrum bei konstanter Energie als auch die Ionenenergieverteilung bei konstanter Ionenmasse bestimmt werden. Ein schaltbares Filament ermöglicht die Ionisation des eindringenden Neutralgases und somit einen Betrieb als Restgasanalysator. Eine detaillierte Beschreibung des betreffenden Massenspektrometers sowie seine Anwendung auf Niederdruckplasmen zeigt [Sta05].

Die massenspektrometrische Untersuchung verschiedener Plasmen zeigte, daß die Ionenzusammensetzung stark mit der gewählten Gasmischung und dem Verunreinigungsanteil im Plasmagefäß variiert, jedoch nur wenig mit dem Gesamtdruck und der angebotenen Mikrowellenleistung.

Tabelle 4.2 zeigt den Anteil des H_3^+ -Moleküliions an der gesamten Ionendichte in H_2/He -Plasmen bei Variation des H_2 -Anteils. Druck und eingespeiste Leistung betragen in allen Fällen $p=14 \text{ Pa}$ bzw. $P_{in}=2 \cdot 600 \text{ W}$.

Man erkennt eine starke Produktion des H_3^+ bereits bei einer Zumischung von 5% H_2 in ein reines Heliumplasma. Da sich im Plasmagefäß und den Gaszuleitungen stets Spuren von Wasserstoff befinden, fällt der H_3^+ -Anteil auch in einem

Anteil H ₂ in He [%]	Anteil H ₃ ⁺ [%]
0	6.6
5	40.8
50	99.4
100	92.0

Tabelle 4.2: Massenspektrometrisch bestimmte Anteile von H₃⁺ an der gesamten Ionendichte in H₂/He-Plasmen bei Variation des H₂-Anteils. Der Gesamtdruck beträgt bei allen Mischungen ca. 14 Pa, die eingespeiste Mikrowellenleistung 2·600 W.

reinen Heliumplasma nicht auf null. Bei höheren Zumischungen liegt der H₃⁺-Anteil im Bereich von 90% der gesamten Ionendichte. Diese Dominanz ist auf die exotherme Produktion von H₃⁺ aus den Stoßpartnern H₂ und H₂⁺ zurückzuführen (siehe Abschnitt 3.3.1). Die gesamte Ionendichte ist unter Vernachlässigung mehrfach geladener Ionen gleich der Elektronendichte. Diese wurde mit Hilfe der Mikrowelleninterferometrie bestimmt [Heg03] und fällt mit zunehmendem H₂-Anteil von $1.7 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ in reinem Helium auf $1.1 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ in 50% H₂/He, so daß die Kombination aus Massenspektrometrie und Mikrowelleninterferometrie für dieses Plasma eine absolute Dichte des H₃⁺ von $\simeq 1 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ vorhersagt. Diese zur Überprüfung der CRDS sehr günstige Situation stellt sich allerdings nur bei geringer Verunreinigung des Plasmagefäßes ein.

Mit Hilfe des Massenspektrometers konnte nachgewiesen werden, daß der H₃⁺-Anteil im Plasma drastisch sinkt, sobald der Entladung Sauerstoff (z.B. durch Wasserverunreinigungen) angeboten wird. Dann wird die Ionenzusammensetzung durch das Hydronium-Ion H₃O⁺ dominiert.

4.3 Ergebnisse

Die angestrebte Messung des H₃⁺-Absorptionssignals konnte mit Hilfe des in diesem Kapitel beschriebenen Aufbaus erreicht werden, allerdings unter großen experimentellen Schwierigkeiten.

Diese Schwierigkeiten entstehen aus der Kombination des sehr empfindlichen Diodenlasers, welcher zur Anregung des Messresonators dient, zusammen mit dem extrem schwachen Absorptionssignal des H₃⁺.

Um eine erfolgreiche Messung zu erhalten, müssen mehrere Bedingungen *gleichzeitig* erfüllt sein:

Der anregende Laser muß während der Messung modensprungfrei und absolut monochromatisch ein Wellenlängenintervall von nur ca. 200 pm Breite um die richtige Zentralwellenlänge überstreichen.

Gleichzeitig muß im Plasmagefäß eine Entladung mit hoher H₃⁺-Dichte brennen, wobei eine Verunreinigung der Plasmaquelle mit Sauerstoff den H₃⁺-Anteil sofort unter die Nachweisgrenze fallen lässt (siehe Abschnitt 4.2.6).

Zusätzlich müssen die Spiegeloberflächen der Resonatorspiegel in einem sehr guten Zustand sein, um eine ausreichend hohe intrinsische Abklingzeit τ_0 des Messre-

sonators und damit eine hohe Nachweisempfindlichkeit zu erreichen.

Ist eine der genannten Bedingungen nicht erfüllt, so kann kein Absorptionssignal des H_3^+ nachgewiesen werden. Eine ausführliche Diskussion der hier aufgezählten Schwierigkeiten erfolgt in Abschnitt 4.3.2.

Trotz dieser Einschränkungen konnte die Messung des H_3^+ -Absorptionssignals erfolgreich demonstriert werden. Der nächste Abschnitt zeigt die Auswertung des Signals.

4.3.1 Dichtebestimmung

Abbildung 4.7 zeigt die mit der CRDS gemessene Absorptionslinie $\text{P}(3,3) \ 3\nu_2 \leftarrow 0$ des H_3^+ -Moleküls in einem 50% H_2 /He-Plasma bei einem Gesamtdruck von 14 Pa.

Dieses Plasma wurde aufgrund der im vorherigen Abschnitt gezeigten massenspektrometrischen Ergebnisse ausgewählt. Der Absorptionskoeffizient der Linie ist von der Größenordnung 10^{-8} cm^{-1} , was die bemerkenswerte Empfindlichkeit des Verfahrens demonstriert. Die Wellenlängenzuordnung weist einen Restfehler von ca. 80 pm zur Literaturwellenlänge von 1469.017 nm auf, das Signal läßt sich jedoch zweifelsfrei anhand der Halbwertsbreite von $\Delta\lambda=14.5 \text{ pm}$ identifizieren, da dies gemäß (4.2) exakt der Dopplerbreite einer Spektrallinie für $\lambda_0=1469 \text{ nm}$ und $T=600 \text{ K}$ entspricht, wenn man für die absorbierende Spezies eine Masse von $m=3 \text{ amu}$ annimmt. Die Schwerteilchentemperatur von $T \simeq 600 \text{ K}$ wurde für die gegebenen Plasmabedingungen in [Heg03] spektroskopisch ermittelt. Das Integral des Absorptionskoeffizienten über die gesamte Linie beträgt $\tilde{\alpha} = 7.6 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \text{ nm}$. Dies entspricht einer Fläche von $3.4 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-2}$ bei einer Integration des Signals über die Wellenzahl anstatt der Wellenlänge, wie sie von [NMT96] verwendet wird (siehe Abschnitt 3.3.1).

Um die Absolutdichte des H_3^+ im Plasmavolumen bestimmen zu können, muss dieser Wert gemäß (3.20) ins Verhältnis zur theoretischen Linienstärke der Absorptionslinie gesetzt werden. Dabei wird die Länge des vom Plasma erfüllten Sichtstrahls zu 20 cm abgeschätzt.

Da die theoretische Linienstärke wie in Abschnitt 3.3.1 beschrieben von den Besetzungstemperaturen T_{rot} und T_{vib} des H_3^+ abhängt, ändert sich die daraus ermittelte Dichte in Abhängigkeit von den eingesetzten Temperaturen.

Für die Rotationstemperatur des H_3^+ wird im Folgenden die für das vorliegende Plasma bestimmte Gastemperatur von 600 K angenommen, die Vibrationstemperatur bleibt somit als freier Parameter. Abbildung 4.8 zeigt die mit Hilfe der CRDS ermittelte H_3^+ -Dichte. Dabei wurde die zu Auswertung herangezogene Vibrationstemperatur variiert, um die daraus resultierende Änderung der ermittelten Dichte zu demonstrieren.

Man erkennt, daß die H_3^+ -Dichte für $T_{\text{vib}} \gtrsim 1700 \text{ K}$ die interferometrische bestimmte Elektronendichte überschreiten würde, was aufgrund der Quasineutralität des Plasmas nicht möglich ist. Für $T_{\text{vib}} \lesssim 1200 \text{ K}$ fiel der Anteil des H_3^+ an der gesamten Ionendichte unter 90%, was wiederum den massenspektrometrischen

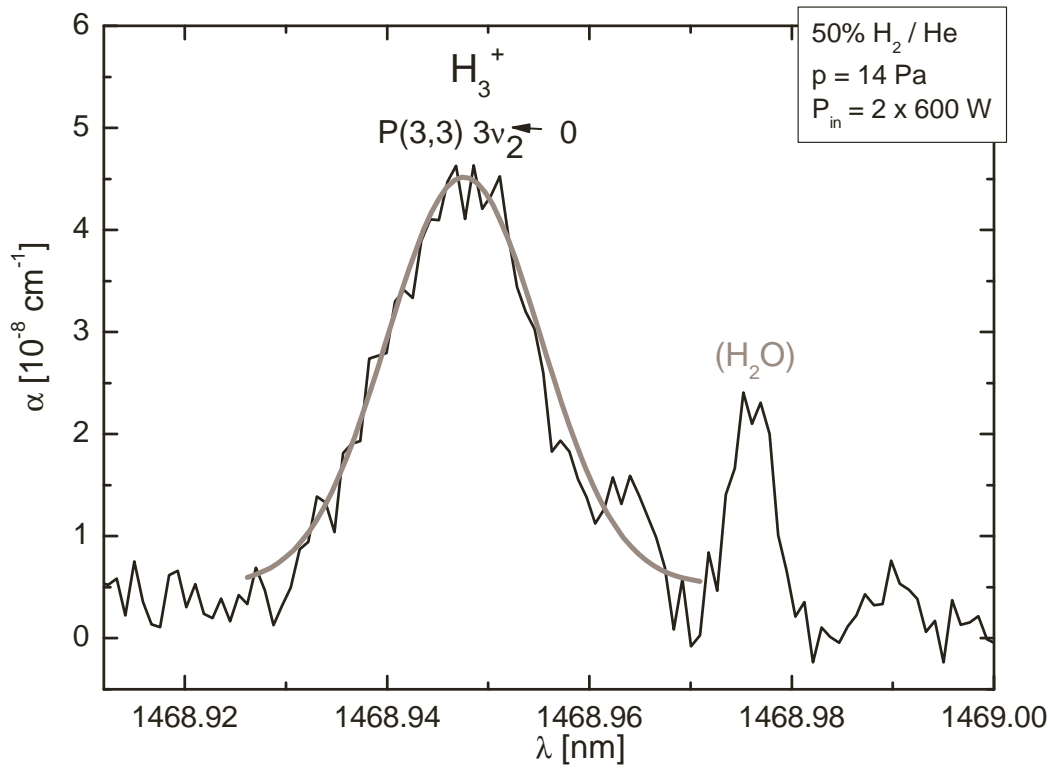


Abbildung 4.7: Absorptionssignal des H_3^+ -Moleküliions in der Mikrowellenentladung COMET. Die Halbwertsbreite der Linie beträgt ca. 14.5 pm, die Linienfläche ist $\tilde{\alpha} = 7.6 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \text{ nm}$.

Messungen widersprüche (siehe Abschnitt 4.2.6). Daher ergibt sich die Vibrationstemperatur des H_3^+ zu $T_{vib} \simeq 1500 \text{ K}$. Dieser Wert erscheint realistisch, da z.B. H_2 und D_2 im vorliegenden Experiment ebenfalls Vibrationstemperaturen deutlich über der Neutralgastemperatur annehmen [Heg03].

Bei der hier vorgestellten Auswertung handelt es sich um eine Anpassung der absorptionspektroskopisch und massenspektroskopisch gemessenen Dichte, wobei die Vibrationstemperatur als Anpassungsparameter dient.

Dieser freie Parameter kann unter Umständen eliminiert werden, indem systematische Reihen von Plasmen mit bekannter Elektronendichte in gleicher Weise mit einem Massenspektrometer und der CRDS untersucht werden. Als zusätzlicher Anhaltspunkt könnte die Vibrationstemperatur des H_2 mit Hilfe der Emissionsspektroskopie bestimmt werden [Heg03].

Der so gewonnene Einblick in die Abhängigkeit der Vibrationstemperatur des H_3^+ von den Experimentparametern wie Druck, Gasmischung und Mikrowellenleistung könnte dann Dichtemessungen ohne weitere Zusatzinformationen ermöglichen. Dies erfordert allerdings zunächst eine bessere experimentelle Handhabbarkeit der Anordnung sowie eine weitere Steigerung der Empfindlichkeit.

Entsprechende Möglichkeiten werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

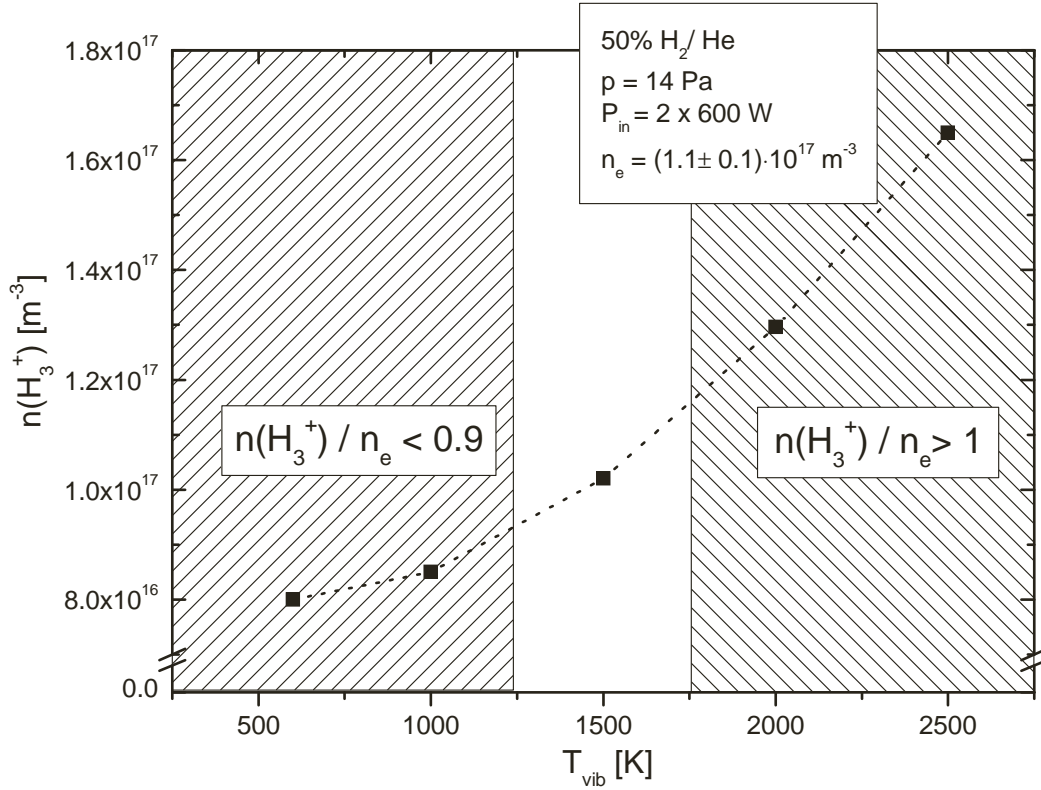


Abbildung 4.8: Aus dem Signal aus Abb. 4.7 ermittelte Dichte des H_3^+ für verschiedene Vibrationstemperaturen bei $T_{\text{rot}} = 600 \text{ K}$.

4.3.2 Diskussion und Verbesserungsmöglichkeiten

Die im vorangegangenen Abschnitt durchgeführte Auswertung zeigt erstmals, daß eine quantitative Auswertung von CRD-Messungen an H_3^+ sinnvolle Ergebnisse liefert, welche in Einklang mit den anderen zur Verfügung stehenden Diagnostikmethoden gebracht werden können. Das war das grundlegende Ziel des in diesem Kapitel vorgestellten Aufbaus.

Obwohl die Funktionsfähigkeit der beschriebenen CRDS-Anlage als Plasmadiagnostik nachgewiesen werden konnte, unterliegt der Betrieb noch Einschränkungen, welche die Durchführung systematischer Messreihen stark erschweren.

Die zu Beginn dieses Kapitels erwähnten Schwierigkeiten sollen in diesen Abschnitt nun ausführlicher dargestellt und mögliche Abhilfen aufgezeigt werden:

- **Laser:** Der zur Anregung des Messresonators verwendete durchstimmbare Diodenlaser eignet sich aufgrund seiner im Idealfall sehr schmalbandigen Emission hervorragend als Anregungsquelle für die CRDS, allerdings bringt die Konstruktion des externen Abstimmresonators auch Erschwernisse für den Messbetrieb mit sich. Die Laseremission hängt extrem empfindlich von der Justierung des Abstimmresonators ab, wobei während der

Durchführung eines Wellenlängenscans sowohl Modensprünge mit plötzlicher Wellenlängenänderung auftreten, als auch Multimode-Emissionen, bei denen der Laser mehrere eng benachbarte Wellenlängen gleichzeitig emittiert. Diese Phänomene spielen sich jedoch unterhalb der Auflösungsgrenze des zur Verfügung stehenden Gitterspektrometers ab. Die Modensprünge machen eine Wellenlängenzuordnung während der Messung praktisch unmöglich, während Multimode-Emissionen den Kontrast des CRD-Signals zerstören, da die verschiedenen emittierten Wellenlängen beim Scan eines Absorptionssignals verschiedenen Dämpfungen unterliegen. Dann bestimmt die jeweils am schwächsten gedämpfte Mode die Abklingzeit und unterdrückt damit das Absorptionssignal.

Eine starke Verbesserung würde hier der Einsatz eines Fabry-Perot-Interferometers (FPI) darstellen, dem ein Teil der Laseremission ständig zugeführt wird. Anhand des freien Spektralabstandes des FPI ließe sich einerseits während eines Scans die zurückgelegte Wellenlängendifferenz exakt zuordnen, andererseits würden Multimode-Emissionen des Lasers sofort als zusätzliche Transmissionsmaxima im FPI-Scan sichtbar.

- *Intrinsische Abklingzeit:* Die intrinsische Abklingzeit τ_0 des Messresonators hängt gemäß (2.12) von der Reflektivität R der verwendeten Spiegel und dem Spiegelabstand d ab. Dabei fällt die Nachweisgrenze für Absorptionssignale mit steigender intrinsischer Abklingzeit wie $\frac{1}{\tau_0^2}$, so daß die Anordnung damit stark an Empfindlichkeit gewinnt (siehe (2.14)). Das in Abbildung 4.7 gezeigte Signal wurde bei einer intrinsischen Abklingzeit von ca. 21 μs gemessen, und befindet sich bereits nahe der Nachweisgrenze der Anordnung.

Während des Plasmabetriebes konnte zusätzlich eine ständige Abnahme von τ_0 auf bis zuletzt ca. 17 μs beobachtet werden. Dies entspricht unter ansonsten gleichen Bedingungen einem zusätzlichen Verlust an Empfindlichkeit. Dieser Effekt kommt durch Besetzung der Spiegeloberflächen mit Teilchen aus der Gasphase zustande.

Die Spiegeloberflächen regenerieren jedoch in Betriebspausen vollständig, so daß der Effekt bei genügend hohem τ_0 tolerabel wäre. Insgesamt ist die Messung von deutlich kleineren als den aus dem Signal 4.7 ermittelten H_3^+ -Anteilen im Plasma daher nicht möglich. Eine Verbesserung würde hier durch eine Erhöhung des Spiegelabstandes erreicht, da die intrinsische Abklingzeit linear mit dem Spiegelabstand ansteigt.

- *Sichtstrahlgeometrie:* Der Sichtstrahl des Messresonators läuft in der verwendeten Konfiguration senkrecht zur Achse der zylinderförmigen Entladung im Plasmagefäß, so daß nur ungefähr ein Fünftel der zur Verfügung stehenden Resonatorlänge vom Plasma erfüllt ist, was zu einem starken Verlust an Absorptionssignal führt. Ein Aufbau mit einem Messresonator in axialer Richtung des Plasmas würde die Empfindlichkeit aufgrund der größeren durchstrahlten Plasmalänge stark erhöhen. Die Zugänglichkeit entlang dieser Achse ist allerdings durch Bauteile der Mikrowelleneinkopplung einge-

schränkt. Deshalb konnte diese Variante nicht realisiert werden.

Die hier beschriebenen Maßnahmen würden die Anwendbarkeit des CRDS–Aufbaus für systematische Messungen stark erhöhen.

5 Gepulste CRDS an einer Quelle für negative Wasserstoffionen

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Messung der H^- -Dichte mittels CRDS in einer induktiv gekoppelten Hochfrequenzentladung.

Die Entwicklung leistungsstarker Quellen zur gezielten Erzeugung negativer Wasserstoffionen hat in der Fusionsforschung in den letzten Jahren große Bedeutung erlangt, da diese in Zukunft für die Neutralinjektionsheizung des geplanten Fusionsexperimentes ITER benötigt werden. Bei diesem Verfahren der Plasmaheizung wird ein Strahl hochenergetischer neutraler Wasserstoff- oder Deuteriumatome in ein magnetisch eingeschlossenes Fusionsplasma eingeschossen.

Dort werden sie durch Ionisation oder Ladungsaustausch als schnelle Plasmateilchen im magnetischen Feldkäfig eingeschlossen. Zur Erzeugung des hochenergetischen Neutralstrahls müssen Ionen zuerst aus einer Ionenquelle extrahiert und dann auf die gewünschte Energie beschleunigt werden. Der beschleunigte Ionenstrahl wird anschließend über Ladungsaustausch in einem Targetgas neutralisiert, da ein Strahl geladener Teilchen den Magnetfeldkäfig nicht durchdringen kann.

Dieses Verfahren wird mit positiven Wasserstoff- und Deuteriumionen weltweit erfolgreich angewandt, und erlaubt die Deposition hoher Heizleistungen in Fusionsexperimenten. Allerdings muss die Eindringtiefe des Neutralstrahls über die Beschleunigungsspannung so eingestellt werden, daß die Energie im Kern des eingeschlossenen Plasmas deponiert wird. Daher werden die benötigten Beschleunigungsspannungen mit steigendem Plasmadurchmesser immer höher. Zusätzlich soll durch die Neutralstrahlinjektion ein zusätzlicher toroidaler Plasmastrom getrieben werden. Das ITER-Referenzdesign fordert daher eine Beschleunigungsspannung von 500 kV/amu, also 1 MV für einen Strahl von Deuteriumionen [ITB02]. Dieser Wert ist im Wesentlichen durch die Anforderungen an den Stromtrieb bestimmt.

Allerdings ist der Neutralisationsquerschnitt für positive Wasserstoff- und Deuteriumionen bei einer Energie von 1 MeV nur noch sehr klein, so daß der beschleunigte Strahl nicht mehr neutralisierbar wäre. Daher muss mit einem Strahl negativer Ionen gearbeitet werden, der aufgrund der geringen Bindungsenergie des zusätzlichen Elektrons auch bei hohen Energien eine Neutralisationseffizienz von ca. 60% behält. Zu diesem Zweck werden H^- -Quellen benötigt, welche im Dauerstrichbetrieb eine Stromdichte von 200 A/m² an negativen Ionen liefern können.

Am Max-Planck-Institut für Plasmaphysik in Garching wird daher die Entwicklung geeigneter H^- -Quellen seit 2002 vorangetrieben [Sa06].

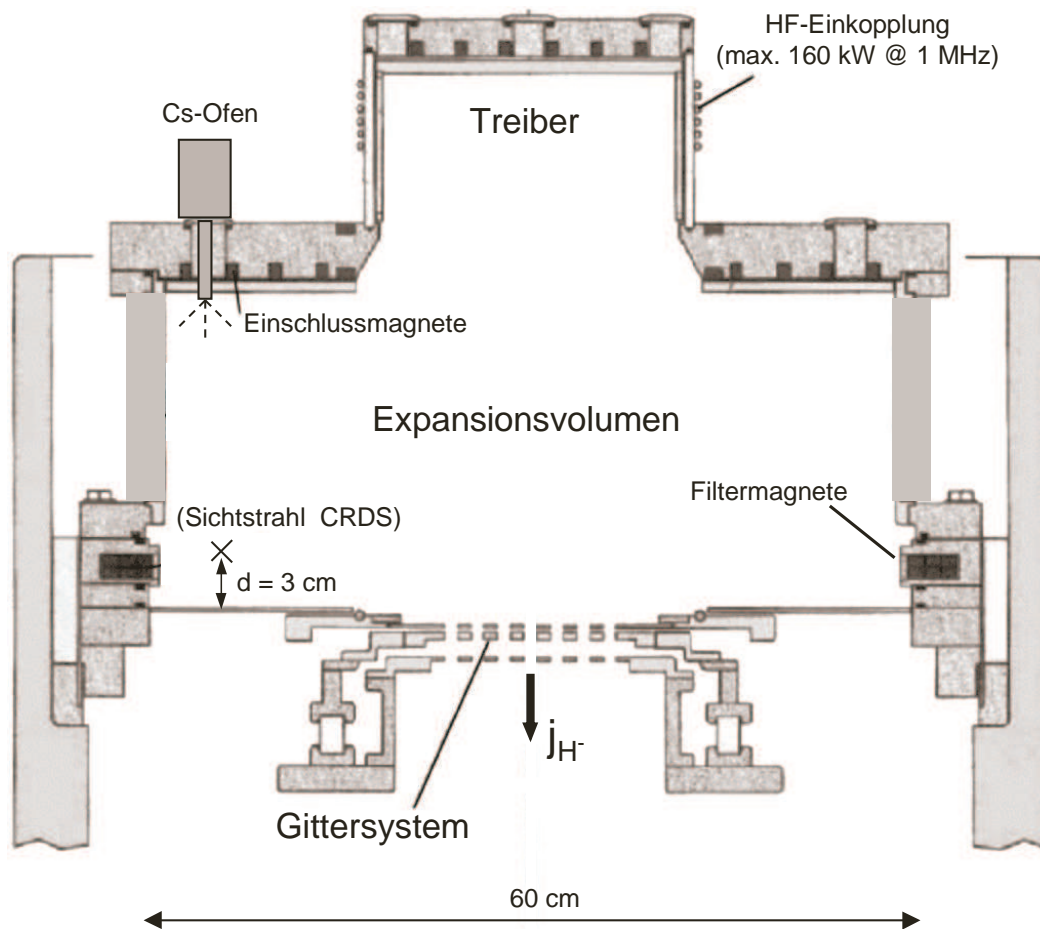


Abbildung 5.1: Plasmaquelle am Experiment BATMAN. Der Sichtstrahl der CRDS ist angedeutet.

5.1 Plasmaquelle und Extraktionssystem

Die im folgenden vorgestellten Messungen wurden am Experiment BATMAN („Bavarian test machine for negative ions“) durchgeführt. Dies ist eine von insgesamt drei Testquellen für negative Wasserstoffionen. Dabei handelt es sich um eine induktiv gekoppelte Hochfrequenzentladung mit einer Anregungsfrequenz von einem Megahertz, welche im gepulsten Betrieb mit Entladungsdauern von ca. sechs Sekunden betrieben wird. Abbildung 5.1 zeigt den schematischen Aufbau der Plasmaquelle. Die Quelle unterteilt sich grob in drei Bereiche: den Bereich der Plasmaerzeugung (Treiber), ein rechteckiges Expansionsvolumen und ein dreistufiges Gittersystem zur Extraktion negativer Ionen.

Der Treiber besteht aus einem Al_2O_3 -Zylinder ($d=24\text{ cm}$) um den eine HF-Spule mit sechs Windungen gewickelt ist. Er enthält einen innenliegenden Faraday-Schirm, welcher einerseits die kapazitive Komponente der HF-Einkopplung unterdrückt und andererseits die Erosion des Wandmaterials durch das Plasma im

Treiber vermindert. Zur Zündung des Plasmas muss in dieser Konfiguration allerdings die Vorionisation des Arbeitsgases durch ein Starterfilament erfolgen. Die Entladung wird im Normalbetrieb bei Senderleistungen zwischen 60 und 120 kW betrieben. Der Fülldruck der Quelle liegt im Bereich um 0.4 Pa. Die Plas-madiagnostik mit Hilfe der Emissionsspektroskopie zeigt für diesen Bereich der Entladung $n_e \simeq 3 - 5 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ und $T_e \simeq 8 \text{ eV}$. Das Plasma breitet sich dann in das Expansionsvolumen aus. Dabei sinken Elektronendichte und Elektronentemperatur bis auf $n_e \simeq 3 - 5 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ und $T_e \simeq 3 \text{ eV}$ vor dem Extraktionssystem [FFF⁺06]. Dadurch wird eine Reduktion des Verlustes an negativen Ionen durch Elektronenabstreifung erreicht (siehe 3.3.2).

Ebenfalls in Abschnitt 3.3.2 wurde darauf hingewiesen, daß sich die Produktion negativer Wasserstoffionen optimieren läßt, indem man dem Plasma eine Oberfläche niedriger Austrittsarbeit anbietet. Zu diesem Zweck ist an der Rückseite des Quellskörpers ein Ofen angebracht, der das Verdampfen von Cäsium ins Quellsvolumen ermöglicht. Erreicht der Cäsiumniederschlag in der Quelle den Bereich des Extraktionssystems, so steigt die Ionenstromausbeute aus der Quelle stark an [Sa06]. Im Extraktionsbereich sind Filtermagnete in den Quellskörper integriert, welche durch ihr Feld die Diffusion der Plasmaelektronen in Richtung zum Extraktionssystem behindern. Dadurch soll die Elektronentemperatur im Bereich vor dem Extraktionssystem erniedrigt werden.

Das Extraktionssystem besteht aus drei Teilgittern (Plasmagitter, Extraktionsgitter und Erdgitter) mit jeweils 148 Löchern, welche eine gesamte Extraktionsfläche von 70 cm^2 zu Verfügung stellen. Das Plasmagitter liegt zusammen mit dem gesamten Quellskörper auf einem Potential von ca. -20 kV gegenüber dem Erdgitter. Über einen Hochspannungsteiler läßt sich die Potentialdifferenz zwischen Plasmagitter und Extraktionsgitter variieren. Diese entspricht der Spannung, mit welcher negative Ladungsträger aus der Quelle extrahiert werden und liegt typischerweise im Bereich von 6-10 kV.

Allerdings müssen die aus dem Quellsvolumen koextrahierten Elektronen aus dem Ionenstrahl entfernt werden. Zu diesem Zweck sind im Extraktionsgitter Ablenkmagnete eingebracht, welche die Elektronen direkt auf das Extraktionsgitter leiten, während die extrahierten negativen Ionen das Extraktionsgitter aufgrund ihrer hohen Masse praktisch ohne Ablenkung passieren. Das Extraktionsgitter verfügt über eine Wasserkühlung zur Abfuhr der durch die Elektronen eingetragenen Leistung. Die verbleibende Potentialdifferenz zwischen Extraktionsgitter und Erdgitter beschleunigt den extrahierten Ionenstrahl auf ein Wasserkalorimeter mit dessen Hilfe die eingebrachte Strahlleistung und damit die extrahierte Ionenstromdichte quantifiziert werden kann. Durch die Verwendung eines Koordinatenkreuzes aus mehreren Thermoelementen läßt sich mit diesem Verfahren außerdem die Strahlform in der Ebene des Kalorimeters auflösen. Zusätzlich zur kalorimetrisch gemessenen Stromdichte steht ein elektrisch gemessener Wert des extrahierten Ionenstroms zur Verfügung. Dieser wird im Folgenden verwendet.

An das Plasmagitter kann eine variable Vorspannung (typischerweise 15-25 V) gegenüber dem Quellskörper angelegt werden, um eine weitere Reduktion des koextrahierten Elektronenstromes zu erreichen.

Zwischen dem Querkörper und dem Extraktionssystem ist ein Diagnostikflansch eingefügt, welcher Durchführungen, Flansche und Fenster zur Diagnostik des Plasmavolumens über dem Plasmagitter zur Verfügung stellt.

5.2 CRDS–Anlage

Die Aufgabe der CRDS–Anlage an BATMAN besteht in der Messung der absoluten H^- –Dichte im Quellenvolumen. Mit Hilfe dieser Dichtemessungen soll die Korrelation zwischen der Dichte der negativen Ionen im Plasmavolumen und dem aus der Quelle extrahierten Strom für verschiedene Bedingungen untersucht werden. Außerdem können die mit Hilfe der CRDS ermittelten H^- –Dichten als Referenzwerte für andere Diagnostikmethoden dienen.

Da die Messung der H^- –Dichte im vorliegenden Fall mit Hilfe einer gepulsten CRDS realisiert ist, folgt der Aufbau im Wesentlichen dem in Abschnitt 2.5 und Abbildung 2.10 beschriebenen Aufbau. Dieser ist im Vergleich zur cw–CRDS weniger aufwendig, da für eine gepulste CRDS weder ein Strahlmodulator noch eine Resonanzanpassung notwendig sind. Allerdings machen die am Experiment BATMAN herrschenden Bedingungen einen modifizierten Aufbau erforderlich, da verschiedenen experimentellen Schwierigkeiten Rechnung getragen werden muss.

5.2.1 Komponenten der gepulsten CRDS

Aufgrund der Plasmaerzeugung mit Hilfe eines Hochfrequenzsenders befindet sich die Umgebung der Plasmaquelle in einem starken HF–Streufeld, welches elektrische Messungen extrem erschwert oder bei kleinen Signalen sogar unmöglich macht. Daher wird das durch den Messresonator transmittierte Nutzsignal in eine Faseroptik eingekoppelt und so in eine HF–Abschirmkabine im Obergeschoss der Experimenthalle übertragen. Erst innerhalb der Kabine wird das Ringdown–Signal auf eine Detektordiode abgebildet und mit einem Transimpedanzverstärker aufbereitet. Das aufbereitete Spannungssignal wird dann an die Datenerfassung übertragen. Der zur Anregung des Messresonators verwendete Laser steht auf einem Granittisch im Kellergeschoss der Experimenthalle um die Entfernung von der Plasmaquelle zu erhöhen. Der Laserpuls wird über eine Spiegelstrecke zum Messresonator geleitet.

Da es sich bei dem Aufbau außerdem um eine Hochspannungsanlage handelt, müssen alle mit der Quelle verbundenen leitfähigen Komponenten innerhalb eines Schutzkäfigs und mit entsprechenden Sicherheitsabständen zu Bauteilen auf Erdpotential installiert werden. Durch den räumlich getrennten Aufbau aller Komponenten wird neben der Verminderung von HF–Einstreuungen auch eine elektrische Entkopplung der Komponenten erreicht, da das Detektorsystem und der Laser durch die Glasfaseroptik bzw. die Spiegelstrecke elektrisch vom Hochspannungsbereich um den Querkörper getrennt sind.

Abbildung 5.2 zeigt die Anordnung der CRDS-Komponenten am Experiment, sowie den verwendeten Sichtstrahl durch den Diagnostikflansch. Um die Dejustierung des Messresonators durch thermische Ausdehnung der Komponenten während der Plasmaentladung zu minimieren, werden die beiden Rohre mit den Spiegelhaltern direkt vom Diagnostikflansch am Quellenkörper getragen, so daß sich der gesamte Resonator gemeinsam mit dem Quellenkörper bewegen kann. Im gepulsten Plasmabetrieb konnte in dieser Konfiguration keine Dejustierung des Resonators durch thermische Effekte beobachtet werden. Die Spiegel können durch Vakuumschieber vom Quellenvolumen getrennt werden, um diese beim Experimentbetrieb ohne CRDS-Messung zu schützen.

Als Anregungsquelle dient ein gütegeschalteter Nd:YAG Laser mit einer Pulslänge von $t_p \simeq 5$ ns. Er erreicht bei einer maximalen Pulsenergie von 50 mJ eine Wiederholrate von 15 Hz. Der Puls wird mit Hilfe einer Spiegelstrecke auf den Eintrittsspiegel des Messresonators gelenkt.

Bei den Spiegeln handelt es sich um dielektrisch beschichtete Spiegel (LosGatos Research) mit einer nominellen Reflektivität von 99.995% bei 1064 nm. In der Halterung des Austrittsspiegels sind sowohl ein Interferenzfilter zur Unterdrückung des Plasmaleuchtens als auch eine kurzbrennweitige Fasereinkopplung integriert. Das Detektorsystem und die Datenerfassung sind identisch mit den in 4.2.1 beschriebenen Komponenten für die cw-CRDS. Zur Justierung des Resonators kommt das in 4.2.3 beschriebene Verfahren zum Einsatz.

5.2.2 Steuerung, Datenerfassung und Auswertung

Abbildung 5.3 zeigt die Verschaltung der CRDS-Anlage an BATMAN. Da es sich um eine gepulste CRDS handelt, ist keine Wellenlängensteuerung sondern nur eine kontrollierte Erfassung der einzelnen Laserpulse notwendig. Zu diesem Zweck stellt der verwendete Nd:YAG-Laser Triggereingänge und Triggerausgänge zur Verfügung, mit deren Hilfe die Pulserzeugung im Laser zu externen Geräten synchronisiert werden kann. Außerdem kommt ein Triggergenerator zum Einsatz, welcher für eine einstellbare Entladungsdauer einzelne Triggerpulse mit einer einstellbaren Frequenz erzeugt. Bei Beginn der Plasmaentladung erhält der Triggergenerator einen Starttrigger von der Anlagensteuerung des Experiments. Der Generator erzeugt dann für eine bestimmte Dauer eine Abfolge von Laserpulsen mit der vorgegebenen Frequenz, indem er pro Ausgangstrigger jeweils eine Entladung der Pumplampe im Laser auslöst. Da es sich um einen gütegeschalteten Laser handelt, wird der Laserpuls erst freigegeben, wenn die Anregung des laseraktiven Mediums sein Maximum erreicht hat. Dann wird der interne Resonator des Lasers über eine Pockelszelle freigeschaltet und der Puls wird emittiert. Die Freigabe des Laserpulses wird über einen Triggerausgang an die Datenerfassung gemeldet, welche dann pro Puls eine Ringdown-Messung auslöst.

Bei einer Plasmaentladung von sechs Sekunden Dauer wird die Anlage typischerweise für acht Sekunden mit einer Frequenz von vier Hertz gepulst, d.h. es werden 32 Ringdownsignale aufgenommen. Somit erreicht man bei geeigneter Wahl des

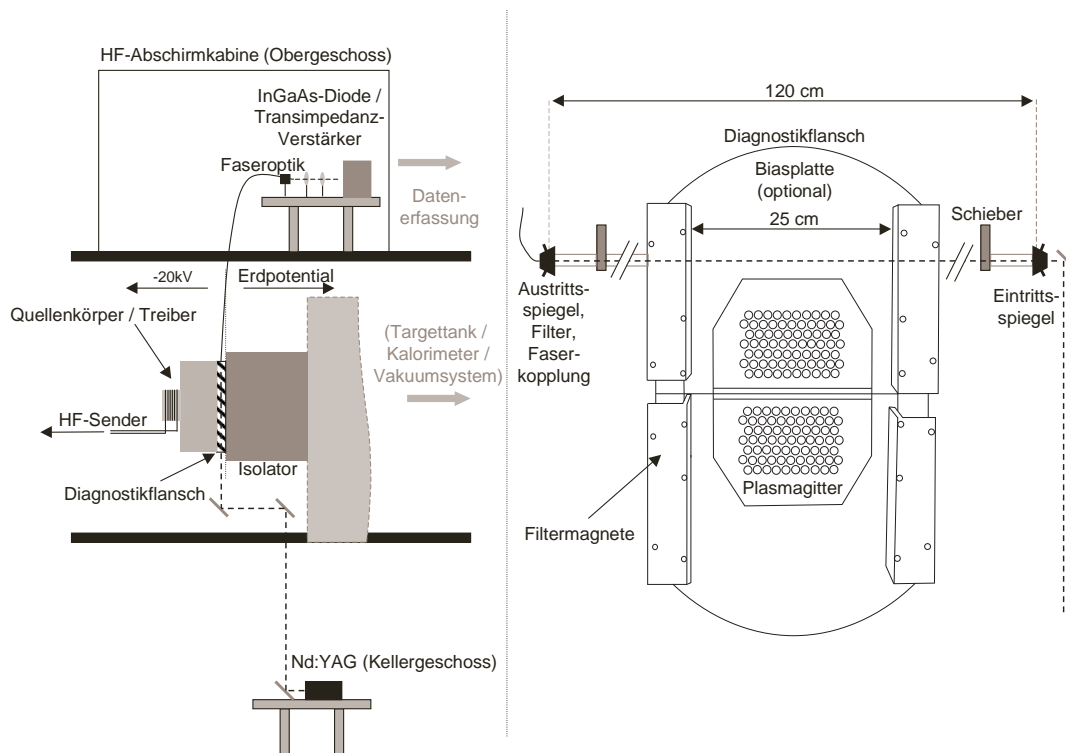


Abbildung 5.2: Anordnung der Komponenten und Strahlführung der CRDS an BATMAN (links, Seitenansicht) und Sichtstrahl im Bereich der Quelle (rechts, Draufsicht) .

Starttriggers ca. eine Sekunde Vor- und Nachlauf ohne Plasmaentladung. Die ersten und letzten Ringdown-Messungen einer Serie können dann zur Festlegung und Kontrolle der intrinsischen Abklingzeit des Messresonators dienen. Abbildung 5.4 zeigt das Messprogramm *CRIMES Pulsed*, welches die Datenerfassung und Auswertung steuert. Es soll an dieser Stelle nur kurz beschrieben werden, da es sich im Wesentlichen um eine veränderte Version des Programmes *CRIMES* handelt, welches in 4.2.2 bereits vorgestellt wurde. Die wichtigsten Eingabeparameter sind die am Triggeregenerator gewählten Messdauer und Messfrequenz, sowie der Faktor *density scaling*. Bei diesem Faktor handelt es sich um das Verhältnis der Resonatorlänge zur plasmaerfüllten Sichtstrahlänge d/l_m wie in (2.13). Die Resonatorlänge beträgt im vorliegenden Fall 120 cm, die vom Plasma erfüllte Sichtstrahlänge beträgt ca. 25 cm, so daß der Faktor *density scaling* für die im Folgenden dargestellten Messungen den Wert 4.8 annimmt. Das Programm gibt Aufnahmenummer, Zeit, Ringdown-Konstante und die daraus ermittelte H^- -Dichte in eine Textdatei aus, so daß die dadurch gewonnene Zeitentwicklung der H^- -Dichte direkt weiterverarbeitet werden kann. Die Ringdown-Konstanten werden durch das in 4.2.2 beschriebene Fitverfahren ermittelt. Die Dichten werden dann gemäß (2.13) ausgewertet, wobei die Abklingkonstante der ersten Messung als intrinsische Abklingzeit τ_0 zu Grunde gelegt wird, da zu diesem Zeitpunkt mit Sicherheit kein Plasma in der Quelle existiert.

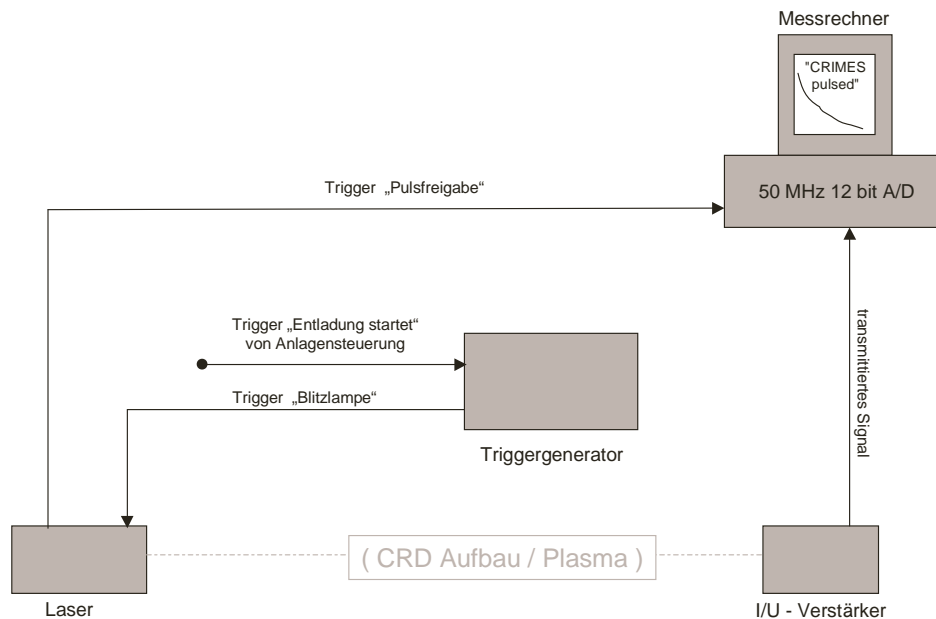


Abbildung 5.3: Blockdiagramm der CRDS-Anlage an BATMAN. Der Messresonator und die Plasmaquelle sind nicht eingezeichnet.

5.3 Ergebnisse

Die gepulste CRDS konnte nach dem Abschluss der Aufbauarbeiten problemlos in Betrieb genommen werden und ermöglicht die Messung der sichtstrahlgemittelten H^- -Dichte im Quellenplasma von BATMAN. Ausgehend von der Auswertung einzelner Ringdown-Signale kann dabei einerseits die Zeitentwicklung der H^- -Dichte während einer einzelnen Plasmaentladung beobachtet werden, andererseits können die Auswirkungen von Änderungen der Experimentparameter auf die H^- -Dichte systematisch untersucht werden.

Zusätzlich können die CRDS-Messungen mit den *gleichzeitig* aus der Quelle extrahierten Ionenströmen verglichen werden. So kann überprüft werden, ob und in welcher Weise die aus der Quelle extrahierten H^- -Ströme mit der gemessenen H^- -Volumendichte korrelieren.

Allerdings ist es für die Interpretation der Ergebnisse wichtig sich zu vergegenwärtigen, daß sich der Sichtstrahl der CRDS in einem Abstand von drei Zentimetern zur Ebene des Plasmagitters befindet. Der extrahierte H^- -Strom wird dagegen aus dem Plasmavolumen direkt vor dem Plasmagitter gespeist.

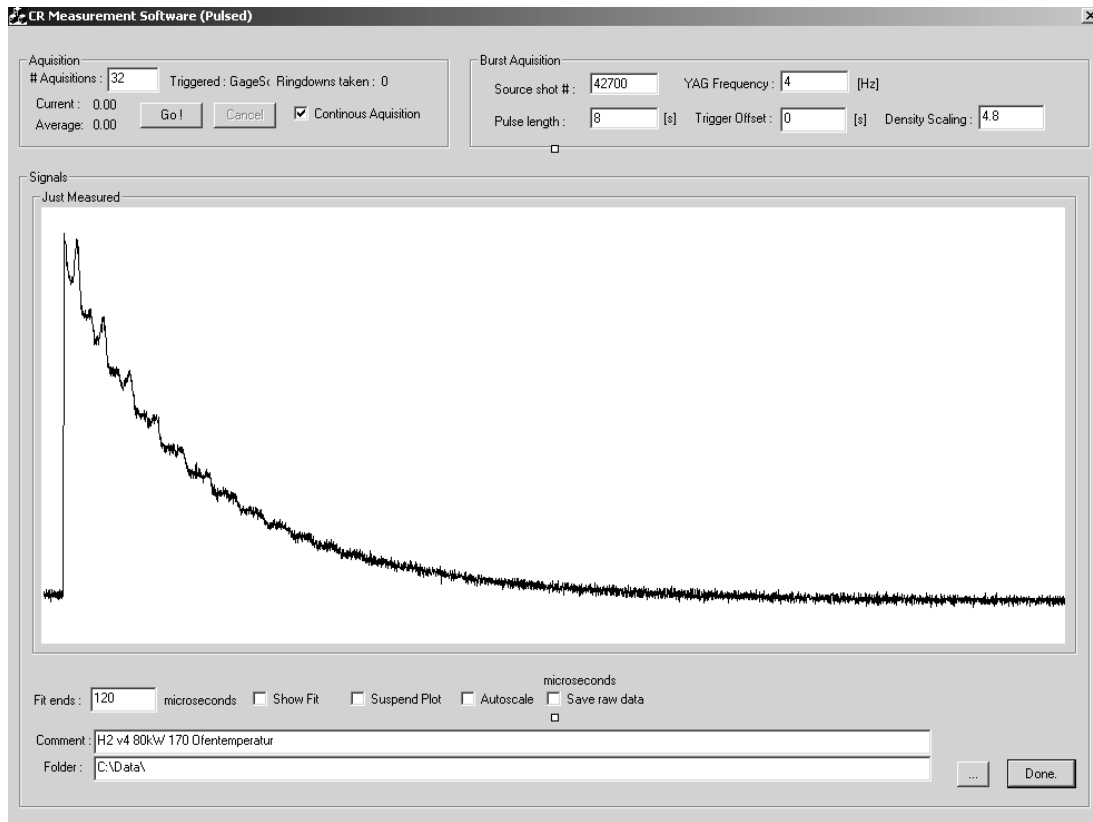


Abbildung 5.4: Bildschirmkopie des Messprogrammes CRIMES Pulsed.

5.3.1 Gemessene Signale und Genauigkeitsbetrachtungen

Abbildung 5.5 zeigt an BATMAN gemessene Ringdown-Signale. Die Leermessung (oben) fällt mit einer intrinsischen Abklingkonstanten von $38.2 \mu\text{s}$ ab. Auf dem exponentiellen Abfall des Signals sind leichte Schwebungen zu erkennen. Diese deuten auf das Anschwingen mehrerer Resonatormoden hin, deren Überlagerung zu einer Modulation des transmittierten Ringdown-Signals führt. Diese Schwebungen induzieren nur einen geringen Fehler auf die gemessenen Abklingkonstanten, solange ihre Amplitude im Vergleich zum Gesamtsignal gering ist. Wenn starke Modulationen des Ringdown-Signals auftreten, so können diese unterdrückt werden, indem man den Messresonator manuell leicht dejustiert. Da Resonatormoden mit höherer transversaler Modenzahl stärkeren Beugungsverlusten als die longitudinale Grundmode unterliegen, sind diese empfindlicher gegenüber der Dejustage des Resonators. Deshalb läßt sich auf diese Weise die Anzahl der anschwingenden Moden ausdünnen.

Die Messung mit Plasma (Abb. 5.5, unten) besitzt eine Abklingkonstante von $26.1 \mu\text{s}$. Das Messsignal zeigt eine starke HF-Störung, welche trotz der beschriebenen Abschirmmaßnahmen vom Detektorsystem aufgefangen wird. Da es sich jedoch um eine gleichförmige Störung von fester Frequenz und Amplitude handelt, kann das Ringdown-Signal durch Mittelung über jeweils eine HF-Periode vollständig

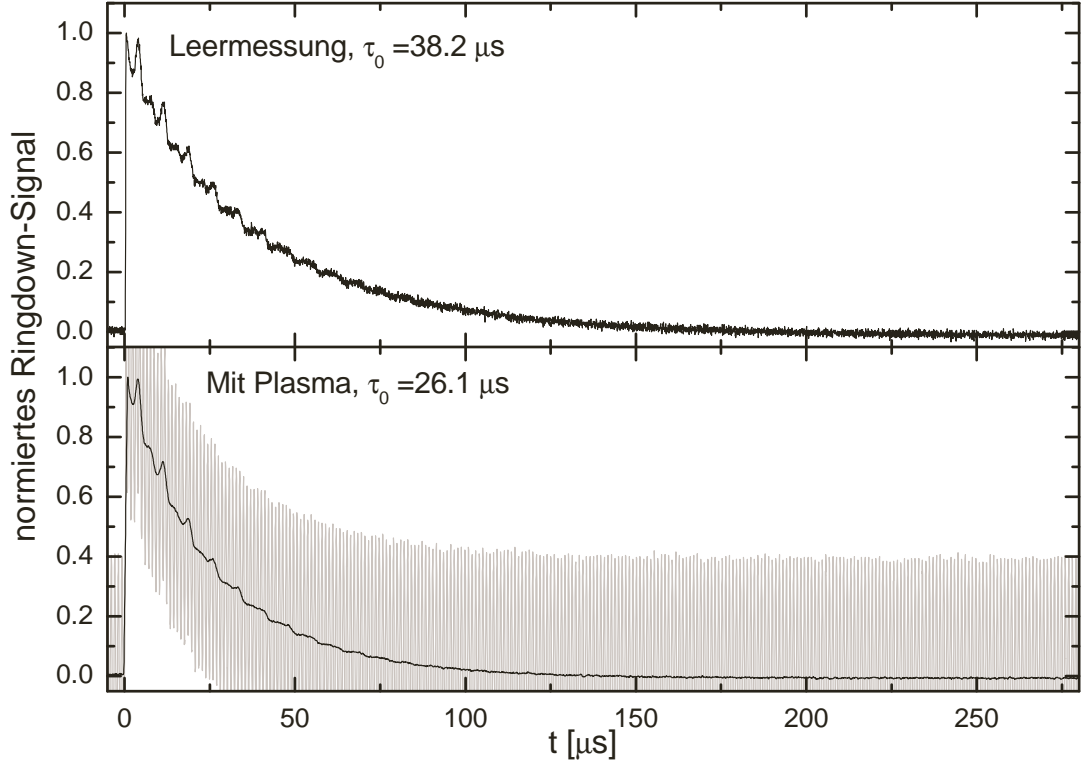


Abbildung 5.5: Ringdown-Signale im leeren Resonator (oben) und während einer Plasmaentladung (unten, gemitteltes und ungemitteltes Signal). Die Differenz der Abklingkonstanten entspricht einer mittleren H^- -Dichte entlang des Sichtstrahls von $5.5 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$.

wiederhergestellt werden. Man erkennt sogar auf dem gemittelten Signal im Vergleich zur Leermessung das identische Schwebungsmuster. An die Fitroutine zur Ermittlung der Abklingkonstanten kann das ungemittelte Signal übergeben werden, da die aus dem gemittelten und dem ungemittelten Signal erhaltenen Abklingkonstanten bis auf ca. 3% identisch sind. In der Praxis haben die HF-Störungen somit kaum Einfluss auf die tatsächlich gemessenen Dichten. Die Differenz der Abklingkonstanten entspricht einer mittleren gemessenen H^- -Dichte entlang des Sichtstrahls von $n(H^-) = 5.5 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$ gemäß

$$n = \frac{1}{\sigma c} \cdot \gamma \cdot \left(\frac{1}{\tau'} - \frac{1}{\tau_0} \right) \quad (5.1)$$

mit $\gamma \equiv d/l_m = 4.8$ und $\sigma = 3.5 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ (siehe (2.13)).

Der maximale Fehler in der gemessenen Dichte ergibt sich aus dem totalen Differential von (5.1):

$$\begin{aligned} \Delta n &= \Delta \gamma \cdot \left| \frac{\partial n}{\partial \gamma} \right| + \Delta \tau' \cdot \left| \frac{\partial n}{\partial \tau'} \right| + \Delta \tau_0 \cdot \left| \frac{\partial n}{\partial \tau_0} \right| = \\ &= \frac{1}{\sigma c} \left[\delta \gamma \cdot \left| \frac{1}{\tau'} - \frac{1}{\tau_0} \right| + \Delta \tau' \cdot \left| \frac{\gamma}{\tau'^2} \right| + \Delta \tau_0 \cdot \left| \frac{\gamma}{\tau_0^2} \right| \right]. \end{aligned} \quad (5.2)$$

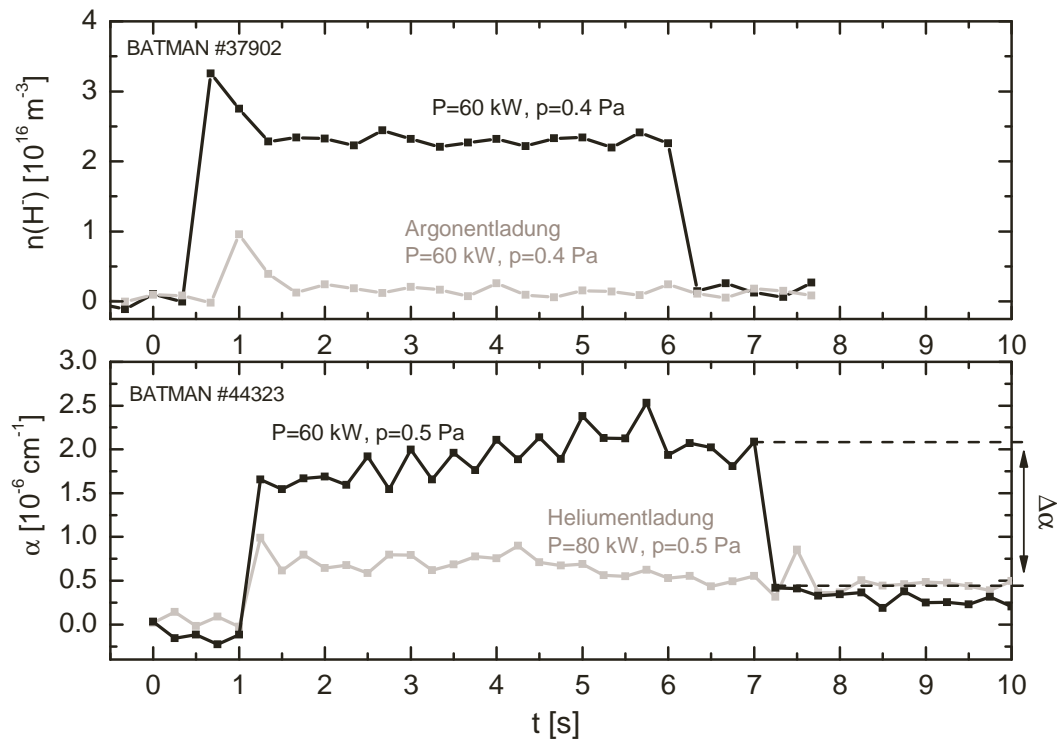


Abbildung 5.6: Oben: Zeitauflöste H^- -Dichte in BATMAN während Entladungen in einer cäsiumfreien Quelle (oben), sowie eine Entladung mit Argon als Arbeitsgas. Unten: Zeitauflöster Absorptionskoeffizient bei hohem Cäsiuminventar, einmal mit Wasserstoff und einmal mit Helium als Arbeitsgas.

Die Schwankung zweier nacheinander gemessener Abklingkonstanten beträgt bei ansonsten konstanten Bedingungen im Mittel $0.4 \mu\text{s}$.

Die Unsicherheit im Streckenverhältnis γ wird zu 15% angenommen, da das Plasma den Quellenkörper in Abhängigkeit von den Entladungsparametern unterschiedlich weit ausfüllen kann. Setzt man diese Werte in (5.2) ein, so erhält man für die aus Abb. 5.5 abgeleitete Dichte einen maximalen Fehler von $\Delta n(H^-) = 5.7 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-3}$, also ungefähr 10% der gemessenen Dichte. Dieses Verhältnis ändert sich im Bereich der typischerweise auftretenden Dichten nur wenig, so daß es gerechtfertigt erscheint, den Fehler pauschal mit 10% der Dichte abzuschätzen.

Auf den Einfluss eventueller zusätzlicher Absorptionen während der Plasmaentladung und die dadurch entstehenden Unsicherheiten wird im nächsten Abschnitt eingegangen.

5.3.2 Zeitspuren

In Abbildung 5.6 ist die zeitliche Entwicklung der H^- -Dichte für verschiedene Entladungen von jeweils ca. sechs Sekunden Dauer aufgetragen. Die Entladung

#37902 zeigt eine für eine cäsiumfreie Quelle typische Zeitspur:

Die gemessene H^- -Dichte während der Entladung ist von der Größenordnung 10^{16} m^{-3} und fällt nach Ende der Entladung in guter Näherung wieder auf null ab. Dies bedeutet, daß sich die Spiegeloberflächen und die Justierung der CRDS-Anlage während des Plasmapulses kaum verändert haben, da der Messresonator nach dem Ende der Entladung die gleiche intrinsische Abklingzeit τ_0 besitzt. Die Überhöhung der Dichte zu Beginn der Entladung wird durch einen zusätzlichen Gasstoß verursacht. Dieser wird der Quelle zugeführt, um das Zünden des Plasmas zu erleichtern.

Um sicherzustellen, daß die gemessene Absorption tatsächlich auf das Photodetachment des H^- im Plasmavolumen zurückzuführen ist, wurde eine Argonentladung bei ansonsten gleichen Bedingungen durchgeführt. Die entsprechende Messung ist ebenfalls in Abb. 5.6 dargestellt und zeigt praktisch keine Reaktion der Messanordnung auf das Argonplasma. Die auftretenden Restsignale sind auf in den Gaszuleitungen verbliebenen Wasserstoff zurückzuführen. Ein Einfluss der Stromextraktion auf die im Volumen gemessene H^- -Dichte konnte aufgrund des relativ hohen Abstandes zum Extraktionssystem in keinem Fall beobachtet werden.

Im unteren Teil von Abb. 5.6 ist eine CRDS-Zeitspur bei hohem Cäsiuminventar (siehe Abschnitt 5.3.4) in der Quelle dargestellt. In diesem Fall ist auf der Ordinatenachse anstatt einer gemessenen Dichte lediglich der Absorptionskoeffizient aufgetragen.

Man erkennt deutlich, daß die Absorption entlang des Sichtstrahls nach dem Ende der Plasmaentladung nicht auf null fällt, sondern eine Restabsorption zurückbleibt.

Diese ist mit hoher Wahrscheinlichkeit auf eine Absorption des Cäsiumdimers Cs_2 zurückzuführen, da Cs_2 im Wellenlängenbereich um $1 \mu\text{m}$ eine starke Absorptionsbande aufweist [BDS77]. Nach der Entladung benötigt die remanente Absorption ungefähr eine Minute um wieder vollständig abzuklingen. Dies deutet auf eine Freisetzung des Cäsiumdampfes von während der Entladung erwärmten Bauteilen hin.

Um zu klären, welche Rolle diese Absorption *während* der Plasmaentladung spielt, wurde eine Zeitspur in einer Helium¹-Entladung bei möglichst ähnlichen Parametern aufgezeichnet (ebenfalls Abb. 5.6, unten). In diesem Fall ist die absorbierende H^- -Dichte in der Entladung vernachlässigbar klein.

Die Messung am Heliumplasma zeigt eine ständige Absorption während der gesamten Entladungsdauer. Nach dem Abschalten des Plasmas stimmt diese Absorption gut mit der Restabsorption nach einer Wasserstoffentladung überein.

Daher scheint die Annahme gerechtfertigt, daß sich die Gesamtabsorption auch während einer Wasserstoffentladung aus der Absorption durch H^- und Cs_2 zu-

¹Argon konnte in diesem Fall als Edelgas nicht gewählt werden, da es aufgrund seiner hohen Atommasse ($m=40$) eine starke Sputterwirkung auf das Cäsiuminventar in der Quelle hat. Dies würde die Messung verfälschen.

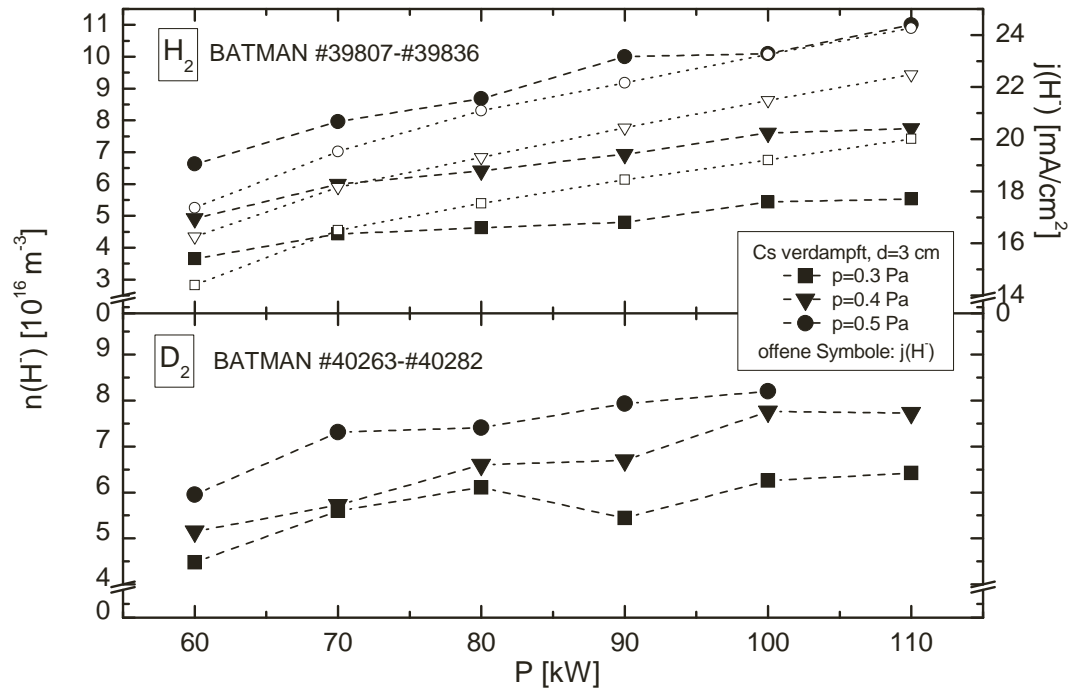


Abbildung 5.7: Oben: Sichtstrahlgemittelte Dichte negativer Wasserstoffionen (geschlossene Symbole) und extrahierte Stromdichte (offene Symbole, $U_{\text{Extr}} = 9.2 \text{ kV}$) bei Variation von Druck und Leistung. Unten: Sichtstrahlgemittelte Dichte negativer Deuteriumionen bei Variation von Druck und Leistung. In beiden Fällen wurde zur Steigerung der Ausbeute Cäsium in die Quelle verdampft.

sammensetzt. Zur Bestimmung der H^- -Dichte wird in diesem Fall die Differenzabsorption $\Delta\alpha$ zwischen dem letzten Messpunkt mit Plasma und dem ersten Messpunkt ohne Plasma herangezogen. An diesem Punkt kann die Untergrundabsorption direkt quantifiziert werden.

Die Restabsorption wird zwischen diesen beiden Messpunkten als konstant angenommen, da diese auf einer Zeitskala von ca. einer Minute abklingt, die Zeitdifferenz zwischen zwei Messpunkten jedoch nur 250 ms beträgt.

Die Beeinträchtigung der Messung durch die zusätzliche Cs_2 -Absorption kann umgangen werden, indem die Anregungswellenlänge der CRDS geeignet verändert wird. Zu diesem Zweck sind Versuche bei der zweiten harmonischen Frequenz des Nd:YAG-Lasers ($\lambda=532 \text{ nm}$) geplant. Allerdings könnte bei dieser Wellenlänge das Photodetachment des H_2^+ -Moleküls eine Rolle spielen [LPS00].

5.3.3 Parametervariationen

In diesem Abschnitt werden Messungen der Dichte negativer Ionen in Wasserstoff- und Deuteriumentladungen bei systematischer Variation der Quellenparameter vorgestellt. Die Messreihen wurden an einer mit Cäsium konditionierten Quelle

durchgeführt (siehe Abschnitt 5.3.4).

Abbildung 5.7 (oben) zeigt die H^- -Dichte in BATMAN bei Variation von Druck und Leistung. Die gemessene Dichte steigt systematisch mit dem Quellenfülldruck und der zur Verfügung gestellten HF-Leistung an. Dies entspricht den erwarteten Tendenzen, da die Produktion aller geladenen Teilchensorten im Plasma mit einer Erhöhung der Heizleistung ansteigt. Gleichzeitig sinkt die freie Weglänge zwischen zwei Stößen mit steigendem Druck, so daß die Diffusionsverluste aus dem Plasmavolumen abnehmen. Ebenfalls eingetragen sind die aus der Quelle extrahierten Stromdichten, welche ein korrespondierendes Verhalten zeigen. Diese Information ist wertvoll, da sie eine Abschätzung der Leistungsfähigkeit von Quellen *ohne* Extraktionssystem erlaubt, wenn sich ansonsten ähnliche Betriebsparameter und Messbedingungen für die CRDS herstellen lassen.

Da ein beschleunigter D^- -Strahl beim Auftreffen auf das Kalorimeter zur Emission von Neutronen führt, mußte im Falle von Deuteriumentladungen aus Strahlenschutzgründen auf eine Stromextraktion verzichtet werden.

Abbildung 5.7 (unten) zeigt Messungen der D^- -Dichte in Deuteriumentladungen. Die Korrelation mit Druck und Leistung scheint etwas weniger deutlich, allerdings sind die gleichen Tendenzen mit Druck- und Leistungsvariation wie im Falle der Wasserstoffplasmen zu erkennen.

Die weniger deutliche Korrelation ist auf die schlechtere Impedanzanpassung des Hochfrequenznetzwerkes an die Deuteriumentladung zurückzuführen, so daß die tatsächlich im Plasma deponierte Leistung nicht der angeforderten Senderleistung entspricht. Die Messung bei $p=0.5$ Pa und $P=110$ kW konnte nicht durchgeführt werden, da die Entladung aufgrund der starken Fehlanpassung mehrfach von der senderinternen Schutzschaltung abgebrochen wurde.

Die Dichtemessung durch die CRDS ist jedoch für Deuteriumplasmen in unveränderter Weise einsetzbar, da der Wirkungsquerschnitt für das Photodetachment unabhängig vom betrachteten Isotop ist.

5.3.4 Quellenkonditionierung mit Cäsium

Wie in Abschnitt 3.3.2 bereits angedeutet, läßt sich eine zusätzliche Produktion von negativen Wasserstoffionen erreichen, indem dem Plasma eine Oberfläche mit niedriger Austrittsarbeit angeboten wird. Daher werden im Rahmen der Quellenentwicklung Versuche mit Cäsium-geimpften Quellen durchgeführt.

Zu diesem Zweck wird Cäsium mit einer Rate von einigen Milligramm pro Stunde aus einem Ofen in das Quellenvolumen hinein verdampft. Währenddessen werden alle drei Minuten Plasmapulse von ca. sechs Sekunden Dauer durchgeführt. Dies geschieht einerseits, um die Veränderung des extrahierten Ionenstromes beobachten zu können, andererseits trägt das Plasma durch Erosion und Redeposition

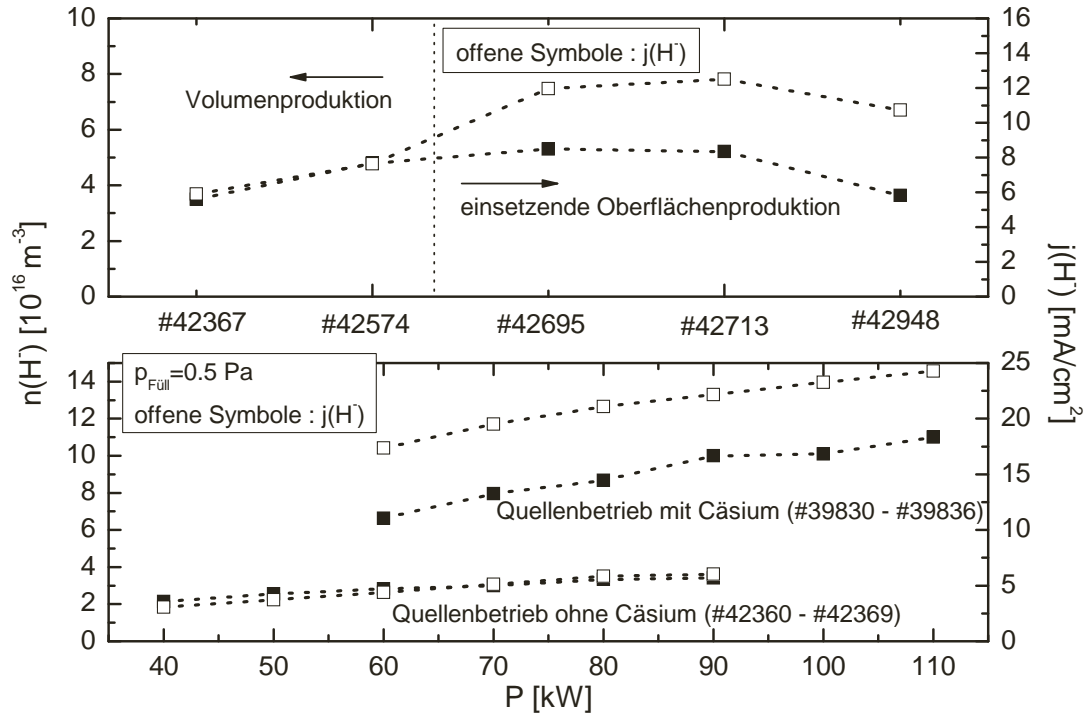


Abbildung 5.8: Oben: H^- -Dichte und extrahierter Ionenstrom während der Quellenkonditionierung mit Cäsium. Unten: Leistungsreihe vor und nach Abschluss des Konditionierungsvorganges.

selbst zum Transport des Cäsiums in der Quelle bei. Außerdem kann versucht werden, die Umverteilung des Cäsiums in der Quelle durch gezielte Temperierung einzelner Quellenkomponenten günstig zu beeinflussen.

Dabei soll das Cäsium vor allem das Extraktionssystem erreichen und sich dort gleichmäßig auf dem Plasmagitter niederschlagen. Dies führt zu einer Erzeugung der negativen Ionen direkt am Ort der Extraktion. Ionen von weiter entfernten Oberflächen können zum extrahierten Strom nicht beitragen, da die Überlebenslänge der H^- im Plasmavolumen nur wenige Zentimeter beträgt [Sa06].

Der gesamte Konditionierungsvorgang kann einige hundert Plasmaentladungen dauern und führt im Idealfall zu einem starken Anstieg des extrahierten Ionenstroms.

Abbildung 5.8 zeigt die gemessenen H^- -Dichten sowie die zugehörigen extrahierten Stromdichten für verschiedene Konditionierungszustände der Quelle.

Die obere Hälfte von Abb. 5.8 zeigt verschiedene einzelne Entladungen, wobei die Konditionierung der Quelle mit steigender Entladungsnummer fortschreitet. Man erkennt, daß sich durch geeignete Wahl der Achsenskalierung entweder die ersten beiden Wertepaare² aus Stromdichte und Ionendichte *oder* die letzten drei

²In der Darstellung gewählt.

Wertepaare zur Deckung bringen lassen. Somit hat sich zwischen den Entladungen #42574 und #42695 das Verhältnis von extrahiertem Strom zu gemessener Dichte geändert. Dabei steigt die Stromdichte bei den späteren Entladungen stark an, während sich die Volumendichte des H^- im Abstand von drei Zentimetern vor dem Plasmagitter nur geringfügig ändert. Dieses Verhalten wird durch die kurze Überlebenslänge der H^- im Plasmavolumen hervorgerufen: Die auf der cäsiumbedeckten Gitteroberfläche produzierten negativen Ionen tragen zwar stark zum gemessenen Strom, jedoch weniger zur gemessenen Volumendichte in drei Zentimetern Abstand bei.

Somit kann man aus der Kombination von CRDS- und Strommessung feststellen, wann die Quelle von der reinen Volumenproduktion des H^- zur Oberflächenproduktion übergeht. Die Entladung #42948 zeigt eine leichte Dekonditionierung der Quelle aufgrund einer längeren Experimentpause.

Die untere Hälfte von Abb. 5.8 zeigt Leistungsvariationen vor und nach dem erfolgreichen Abschluss des Konditionierungsvorganges. Dabei sind die extrahierten Stromdichten im Falle der konditionierten Quelle um ungefähr einen Faktor fünf erhöht. Die gemessene Volumendichte erreicht diesen Faktor aufgrund der bereits erwähnten H^- -Vernichtung auf dem Weg zum Sichtstrahl nicht, ist allerdings ebenfalls deutlich erhöht.

5.3.5 Bias-Variation

Einen weiteren freien Experimentparameter stellt die gewählte Vorspannung des Plasmagitters dar. Dabei wird das Plasmagitter gegenüber dem Plasma positiv vorgespannt, so daß Elektronen und negative Ionen zusätzlich in Richtung Plasmagitter beschleunigt werden. Dies führt zu einer Erniedrigung der im CRD-Sichtstrahl gemessenen Volumendichte mit steigender Biasspannung. Gleichzeitig sinkt die aus der Quelle extrahierte Stromdichte in gleicher Weise ab (Abb. 5.9, oben).

Das ist auf die Tatsache zurückzuführen, daß mit steigender positiver Vorspannung des Gitters immer mehr negative Ionen direkt auf das Plasmagitter gezogen werden, und daher zur Extraktion nicht mehr zur Verfügung stehen. Dies läßt sich anhand der am Experiment gemessenen elektrischen Signale nachvollziehen (Abb. 5.9, unten): Man erkennt, daß mit steigender positiver Vorspannung des Plasmagitters sowohl die Stromdichte der extrahierten Ionen, als auch die der koextrahierten Elektronen abnimmt. Gleichzeitig steigt der über das Plasmagitter abfließende Strom stark an.

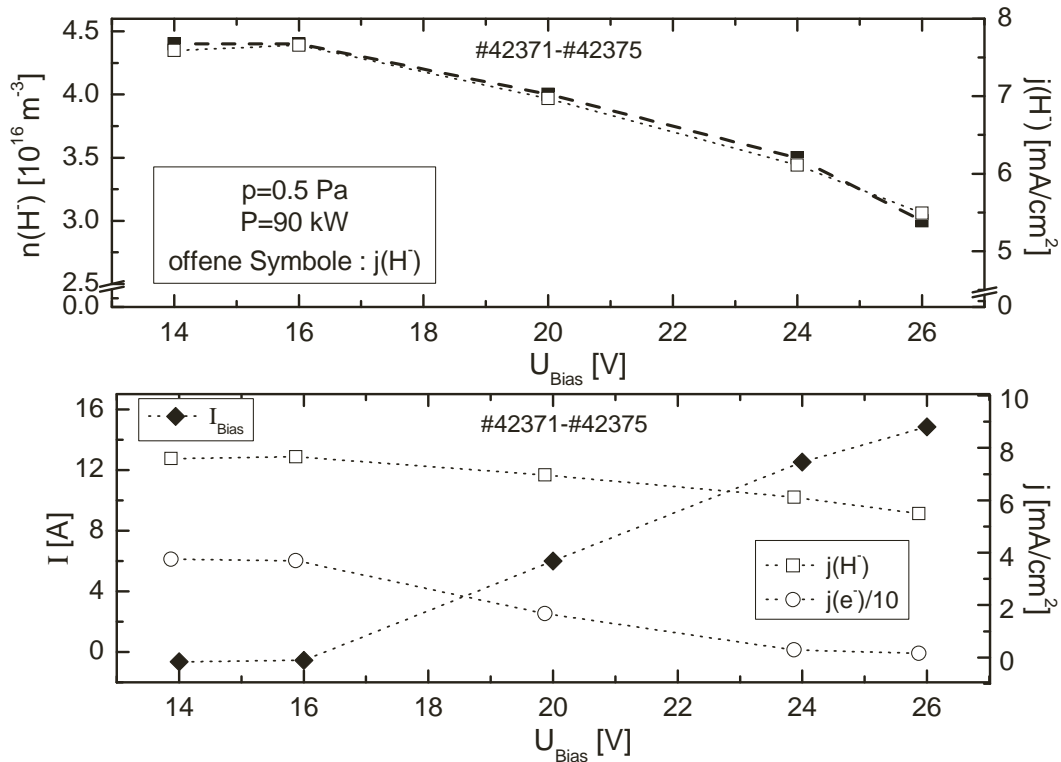


Abbildung 5.9: Oben: Sichtstrahlgemittelte Dichte negativer Wasserstoffionen ($d=3$ cm) sowie die extrahierte Stromdichte negativer Ionen bei Variation der Gittervorspannung (oben). Unten: Biasstrom auf das Plasmagitter, extrahierte Stromdichte von Elektronen (skaliert) und negativen Ionen.

5.3.6 Diskussion und Ausblick

Die für das Experiment BATMAN konzipierte und aufgebaute CRDS konnte erfolgreich in Betrieb genommen werden und misst sehr zuverlässig die Dichte negativer Wasserstoff- und Deuteriumionen im Quellenvolumen. Dazu mussten verschiedene experimentelle Schwierigkeiten wie z.B. Hochspannungsentkopplung, HF-Abschirmung und eingeschränkte räumliche Zugänglichkeit bewältigt werden. Außerdem konnte eine ausreichende Stabilität des Resonators auch bei der Einkopplung hoher Heizleistungen sichergestellt werden.

Somit ist es gelungen, die CRDS als Messmethode für negative Wasserstoffionen an einer Hochleistungsanlage zu etablieren, während diese Anwendung der CRDS ansonsten stets an Entladungen im Labormaßstab demonstriert wurde [QKD98]. Die Anlage erlaubt einerseits eine zeitaufgelöste Messung während der Plasmaentladung, andererseits kann die Variation der Volumendichte an negativen Wasserstoff- und Deuteriumionen mit den Experimentparametern untersucht werden. Dies konnte z.B. anhand von Leistungs- und Druckvariationen oder anhand des Prozesses der Quellenkonditionierung mit Cäsium demonstriert werden. Die Messungen in Cäsium-geimpften Quellen sind bei der momentan verwendeten

Anregungswellenlänge durch eine zusätzliche Absorption des Cs_2 beeinträchtigt, jedoch trotzdem auswertbar.

In allen Fällen skaliert der aus der Quelle extrahierte Ionenstrom systematisch mit den durch die CRDS gemessenen Dichten.

Der Vergleich der gemessenen Ionendichten mit den aus der Quelle extrahierten Strömen spielt eine große Rolle, da dieser Abschätzungen des extrahierbaren Stroms aus Quellen ohne Extraktionssystem erlaubt.

Eine solche Quelle wird am IPP Garching im Moment in Betrieb genommen und soll die Skalierbarkeit des Quellenkonzeptes auf die halbe Größe der für ITER geplanten D^- -Quelle demonstrieren.

Aufgrund der positiven Erfahrungen mit der CRDS an BATMAN ist zur Diagnostik dieser Quelle unter anderem eine erweiterte CRDS mit mehreren Sichtstrahlen geplant.

6 Zusammenfassung

Das sehr empfindliche Absorptionsverfahren der Cavity–Ringdown–Spektroskopie (CRDS) wurde erfolgreich auf zwei verschiedene Niederdruck–Wasserstoffplasmen angewandt.

Das Verfahren der CRDS beruht auf der Messung der Umlaufgüte eines optischen Resonators, der das absorbierende Medium –in diesem Fall in Form des Wasserstoffplasmas– enthält.

Der Messresonator besteht aus zwei hochreflektiven Spiegeln und wird durch einen externen Laser angeregt. Danach wird die Zeitkonstante gemessen, mit der das im Resonator gespeicherte Lichtfeld exponentiell zerfällt. Diese ist typischerweise von der Größenordnung einiger zehn Mikrosekunden. Der Resonator reagiert extrem empfindlich auf Änderungen in der Reflektivität der Resonatorspiegel, sowie auf zusätzliche Dämpfungen des gespeicherten Lichtfeldes durch das Plasma. Dies äußert sich in einer Erniedrigung der Abklingzeit des Resonators. Mit diesem Verfahren lassen sich Absorptionskoeffizienten von bis zu 10^{-9} cm^{-1} nachweisen. Das ist möglich, da im Gegensatz zu herkömmlichen Absorptionsverfahren eine Messung von *Zeiten* anstatt von Intensitäten durchgeführt wird. Auf diese Weise ist die Methode der CRDS unabhängig vom Intensitätsrauschen der Lichtquelle und des Detektors. Je nach Beschaffenheit des erwarteten Absorptionssignals können verschiedene Varianten der CRDS gewählt werden:

Liegt eine Linienabsorption eines Atoms oder Moleküls vor, so muß eine wellenlängenaufgelöste Abtastung des Absorptionssignals durchgeführt werden. In diesem Fall wird ein durchstimmbarer continuous–wave–Laser verwendet, welcher den Messresonator bei verschiedenen Wellenlängen schmalbandig anregen kann. Gleichzeitig muss eine ständige Resonanzanpassung des Messresonators an die momentane Laserwellenlänge durchgeführt werden, da dieser ansonsten keine Leistung aus dem anregenden Lichtfeld aufnimmt.

Eine Ringdown–Messung erfolgt, indem die Anregung des Messresonators durch einen schnellen optischen Schalter unterbrochen wird, während die durch den hinteren Resonatorspiegel transmittierte Intensität aufgezeichnet wird. Durch die Messung der Resonatorabklingzeit als Funktion der Laserwellenlänge kann dann ein wellenlängenaufgelöstes Absorptionsspektrum aufgenommen werden.

Eine weitere Möglichkeit besteht in der Verwendung eines Kurzpuls–Lasers als Anregungsquelle. In diesem Fall ist keine Resonanzanpassung des Messresona-

tors notwendig, wenn die Pulslänge des Lasers die Umlaufdauer des Lichtes im Resonator nicht wesentlich übersteigt. Diese Dauer beträgt typischerweise einige Nanosekunden. Außerdem wird keine Strahlabschaltung benötigt. Eine solche Anordnung ist experimentell einfacher zu realisieren, ist jedoch aufgrund der kurzen beteiligten Zeitskalen nicht für wellenlängenaufgelöste Messungen geeignet. Dieser Aufbau bietet sich somit für breitbandige Absorptionen mit geringer Wellenlängenabhängigkeit an.

Beide Varianten der CRDS wurde in dieser Arbeit realisiert. Dabei wurde eine Absorptionslinie des H_3^+ -Molekülions in einer Mikrowellenentladung ausgewertet, sowie die Dichte negativer Wasserstoff- und Deuteriumionen in einer hochfrequenzangeregten Ionenquelle bestimmt.

Der Aufbau der cw-CRDS wurde für die Messung einer Absorptionslinie des H_3^+ -Molekülions in einer Mikrowellenentladung verwendet.

Das H_3^+ besitzt keine elektronisch angeregten Zustände, jedoch ein umfangreiches –wenn auch intensitätsschwaches– Bandenspektrum im infraroten Spektralbereich. In Wasserstoffplasmen hat H_3^+ oft einen hohen Anteil an der gesamten Ionendichte, da es exotherm über den Stoß von H_2^+ mit H_2 im Plasmavolumen gebildet wird.

Bei der verwendeten Plasmaquelle handelt es sich um ein zylindersymmetrisches Mikrowellenplasma mit maximal 2.4 kW Heizleistung. Als Arbeitsgase dienen Wasserstoff, Deuterium und Edelgase in variablen Anteilen. Die Plasmaquelle kann im Druckbereich von 10–100 Pa betrieben werden. Dabei erreicht die Entladung Elektronendichten von $8 \cdot 10^{16}$ – $2 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ bei Elektronentemperaturen von 1.2–3.5 eV.

An dieser Entladung wurde eine cw-CRDS mit einem Messresonator von einem Meter Länge aufgebaut, deren Sichtstrahl das Plasma auf einer Länge von ca. 20 cm senkrecht zur Zylinderachse schneidet. Die Anregung erfolgt durch einen durchstimmbaren cw-Diodenlaser, die Strahlabschaltung durch einen akusto-optischen Modulator. Das durch den hinteren Resonatorspiegel transmittierte Ringdownsignal wird durch eine InGaAs-Diode und einen Transimpedanzverstärker an eine automatisierte Datenerfassung weitergeleitet, welche die gemessene Abklingkonstanten auswertet und darstellt.

Der CRDS-Aufbau erwies sich als prinzipiell funktionstüchtig, jedoch experimentell schwer handhabbar. Dies ist größtenteils auf die eingeschränkte Kontrollierbarkeit der Laseremission im Bezug auf spektrale Reinheit und die tatsächlich emittierte Wellenlänge zurückzuführen. Außerdem reagiert die Plasmaquelle auf eventuelle Gefäßverunreinigungen mit einem starken Abfall der H_3^+ -Dichte, während das Hydronium-Ion H_3^+ die Rolle der dominierenden Ionspezies übernimmt. Deshalb ist nur unter idealen Bedingungen eine erfolgreiche Messung der H_3^+ -Absorption möglich.

Trotzdem konnte die H_3^+ -Absorptionslinie P(3,3) der Obertonbande $3\nu_2 \leftarrow 0$ bei einer Wellenlänge von 1469.017 nm erfolgreich gemessen werden. Die Messung erfolgte in einem Helium-Wasserstoff-Plasma bei einem Druck von 14 Pa und

einer Heizleistung von 1.2 kW. Der maximale Absorptionskoeffizient der Linie betrug dabei lediglich $4.5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^{-1}$ und zeigt somit die hohe Nachweisempfindlichkeit der Anordnung.

Gleichzeitig wurde der H_3^+ -Anteil an der gesamten Ionendichte mit Hilfe eines energieauflösenden Massenspektrometers zu über 90% bestimmt. Dies entspricht einer absoluten Dichte von $1 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$. Die quantitative Auswertung der H_3^+ -Absorptionslinie auf Basis der zur Verfügung stehenden spektroskopischen Daten ergibt ebenfalls eine Dichte des H_3^+ von $1 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$, wenn für die Vibrations-temperatur des H_3^+ ein Wert von $T_{\text{Vib}} \simeq 1500 \text{ K}$ angenommen wird. Dieser Wert liegt deutlich über der Schwerteilchentemperatur von ca. 600 K, jedoch weit unterhalb der typischen Elektronentemperaturen. Moleküle wie H_2 und D_2 zeigen im verwendeten Plasmaexperiment ähnliche Vibrationstemperaturen, so daß dieser Wert plausibel erscheint.

Somit konnte gezeigt werden, daß die schwachen Absorptionssignale des H_3^+ in typischen Laborplasmen mit Hilfe der CRDS prinzipiell nachweisbar sind und auch ihre quantitative Auswertung zu sinnvollen Ergebnissen für die daraus resultierenden Dichten führt.

Verbesserungen des Aufbaus im Hinblick auf eine weitere Steigerung der Empfindlichkeit und eine Verbesserung der experimentellen Handhabbarkeit sind jedoch für zukünftige systematische Untersuchungen wünschenswert.

Ein Aufbau nach dem Prinzip der gepulsten CRDS wurde an einer Ionenquelle zur gezielten Erzeugung von negativen Wasserstoff- und Deuteriumionen realisiert.

Die Entwicklung entsprechender Quellen mit einer extrahierbaren Stromdichte von bis zu 200 A/m^2 wird mit großem Nachdruck vorangetrieben, da diese für die Plasmaheizung des zukünftigen Fusionsexperimentes ITER benötigt werden. Am Max-Planck-Institut für Plasmaphysik in Garching werden zu diesem Zweck mehrere Testquellen betrieben und ständig weiterentwickelt. Dabei handelt es sich um induktiv gekoppelte HF-Plasmaquellen, aus denen die negativen Ionen mit Hilfe eines mehrstufigen Gittersystems extrahiert werden.

Die CRDS-Messungen wurden dort am Experiment BATMAN durchgeführt. Die Plasmaquelle an BATMAN wird typischerweise bei einem Fülldruck von ca. 0.4 Pa und bei HF-Senderleistungen von 60–120 kW betrieben. Sie erreicht dabei im relevanten Bereich vor dem Gittersystem Elektronendichten von $3\text{--}5 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ bei einer Elektronentemperatur von ca. 3 eV.

Um die Ausbeute an negativen Ionen zu erhöhen, kann Cäsium in die Quelle verdampft werden. Schlägt dieses sich in geeigneter Weise auf dem Gittersystem nieder, so steigt die extrahierte Stromdichte an negativen Ionen stark an. Das wird durch den erleichterten Einfang von Elektronen durch Plasmateilchen auf der Gitteroberfläche ermöglicht, da Cäsium eine geringe Austrittsarbeit für Elektronen besitzt.

Der Messresonator des CRDS-Aufbaus ist 120 cm lang und sein Sichtstrahl schneidet das Plasma auf einer Länge von ca. 25 cm in einem Abstand von 3 cm

zur Ebene des Gittersystems. Er wird von einem gepulsten Nd:YAG-Laser bei der fundamentalen Wellenlänge von 1064 nm angeregt. Dabei musste der Messresonator vom Lasersystem und der Signaldetektion durch eine Spiegelstrecke bzw. eine Lichtleiteranordnung räumlich und elektrisch entkoppelt werden. Das ist notwendig, da der Resonator gemeinsam mit der gesamten Plasmaquelle auf einem Potential von bis zu -20 kV liegt. Nach der Auskopplung des Messsignals aus der Glasfaserstrecke wird das Signal über eine InGaAs-Diode detektiert, in einem I/U-Verstärker aufbereitet und der Datenerfassung zugeführt.

Der für BATMAN entwickelte CRDS-Aufbau erlaubt eine zeitaufgelöste absolute Messung der sichtrahlgemittelten H^- -Dichten im Quellenplasma. Dies ist besonders im Hinblick auf die gleichzeitig aus der Quelle extrahierten H^- -Ströme interessant.

Mit Hilfe der CRDS konnte die systematische Variation der H^- -Dichte mit Betriebsparametern wie Druck und HF-Leistung demonstriert werden, gleichzeitig zeigen die extrahierten Ionenströme eine eindeutige Korrelation zu Volumendichte des H^- in der Quelle. Die Kenntnis dieser Korrelation kann in Zukunft zur Abschätzung der Leistungsfähigkeit von Testquellen *ohne* Extraktionssystem dienen.

In einer zusätzlichen Messreihe konnte die Funktionstüchtigkeit der Anordnung für Deuteriumplasmen gezeigt werden.

Desweiteren konnte mit Hilfe der CRDS-Messungen der Konditionierungsvorgang der Quelle mit Cäsium erfaßt und damit der Übergang von der Volumen- zur Oberflächenproduktion des H^- sichtbar gemacht werden.

Diese Messungen stellen die erste erfolgreiche Anwendung der CRDS auf eine Hochleistungsquelle für negative Ionen dar.

Insgesamt konnte demonstriert werden, daß sich die Cavity-Ringdown-Spektroskopie in verschiedensten Bereichen als Plasmadiagnostik einsetzen läßt. Dabei ist es gelungen, die CRDS-Messtechnik in unterschiedliche bereits existierende Plasmaexperimente zu integrieren. Dadurch wird die Messung von Signalen möglich, die ansonsten für nicht-invasive spektroskopische Methoden nicht zugänglich wären.

Literaturverzeichnis

- [AF89] O. Auciello und D.L. Flamm, *Plasma diagnostics, Vol. I: Discharge parameters and chemistry*, Academic Press, San Diego (1989).
- [Bac00] M. Bacal, *Rev. Sci. Instrum.* **71** (2000), 3981.
- [Bar77] C. F. Barnett, Book ORNL-5206, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge (1977).
- [BDS77] R. P. Benedict, D. L. Drummond und L.A. Schlie, *J. Chem. Phys.* **66** (1977), 4600.
- [BEJ69] M. T. Bowers, D. D. Elleman und J. King Jr, *J. Chem. Phys.* **50** (1969), 4787.
- [BMB96] M. Bacal, C. Michaut und F. El Balghiti, *Rev. Sci. Instrum.* **67** (1996), 1138.
- [Bor32] M. Born, *Optik*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo (1932).
- [Che74] F. F. Chen, *Introduction to Plasma Physics*, Plenum Press, New York, London (1974).
- [Cid96] P. E. Ciddor, *Appl. Opt.* **35** (1996), 1566.
- [Dem93] W. Demtröder, *Laser-Spektroskopie*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo (1993).
- [Fan02] U. Fantz, Report IPP 10/21, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching (2002).
- [FFF⁺06] U. Fantz, H. Falter, P. Franzen, D. Wunderlich, M. Berger, A. Lorenz, W. Kraus, P. McNeely, R. Riedl und E. Speth, *Nuclear Fusion* * (2006), *.
- [Gre01] P.T. Greenland, *Proc. R. Soc. Lond. A* **457** (2001), 1821.
- [Gri94] A. Grill, *Cold plasma in materials technology: From fundamentals to applications*, IEEE Press, New York (1994).
- [Heg03] B. Heger, *Untersuchung und Interpretation der Molekülstrahlung von Wasserstoff und Deuterium in Niederdruckplasmen*, Mensch & Buch Verlag, Berlin (2003).
- [Her45] G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure II. Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules*, van Nostrand, Toronto, New York (1945).

- [HvBHM04] Daniel Halmer, Golo von Basum, Peter Hering und Manfred Mürtz, *Rev. Sci. Instrum* **75** (2004), 2187.
- [HW65] M. A. Heald und C. B. Wharton, *Plasma Diagnostics with Microwaves*, John Wiley and Sons Inc., New York (1965).
- [HW92] N. Hodgson und H. Weber, *Optische Resonatoren*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, London, Paris, Tokyo (1992).
- [ITB02] ITER EDA Documentation Series ITER Technical Basis, *International Atomic Energy Agency* **24** (2002), 257ff.
- [Jan92] G. Janzen, *Plasmatechnik: Grundlagen, Anwendungen, Diagnostik*, Hüthig, Heidelberg (1992).
- [JKRK94] R. Jaquet, W. Kutzelnigg, R. Röhse und W. Klopfer, *J. Chem. Phys* **101** (3) (1994), 2231.
- [JLEP87] R.K. Janev, W.D. Langer, J.K. Evans und D.E. Post, *Elementary Processes in Hydrogen-Helium Plasmas*, Springer, Berlin (1987).
- [KF86] M. V. Klein und T. E. Furtak, *Optik*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, London, Paris, Tokyo (1986).
- [Lan24] I. Langmuir, *Gen. Elec. Rev.* **27** (1924), 449.
- [LHS⁺05] G. Lombardi, K. Hassouni, G.D. Stancu, L. Mechold, J. Röpcke und A. Gicquel, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14** (2005), 440.
- [LM01] C. M. Lindsay und B. J. McCall, *J. Mol. Spectrosc.* **210** (2001), 60.
- [Lot68] H. K. V. Lotsch, *Optik* **28** (1968), 65,328,555.
- [LPS00] V. S. Lebedev, L. P. Presnyakov und I. I. Sobel'man, *JETP Letters* **72** (2000), 256.
- [McC] B. J. McCall URL <http://h3plus.uchicago.edu>.
- [McC00] Benjamin J. McCall, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **358** (2000), 2385.
- [McN95] I. McNab, *Adv. Chem. Phys.* **89** (1995), 1.
- [Mes01] D. Meschede, Herausgeber, *Gerthsen Physik*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo (2001).
- [MO00] B. J. McCall und T. Oka, *Science* **287** (2000), 1941.
- [MP02] P. Macko und R. Plašil, *Czechoslovak Journal of Physics* **52**, Suppl. D (2002), D695.
- [MT88] S. Miller und J. Tennyson, *J. Mol. Spectrosc.* **128** (1988), 530.
- [NMT96] L. Neale, S. Miller und J. Tennyson, *Astrophys. J.* **464** (1996), 516.
- [OD88] A. O'Keefe und D. G. Deacon, *Rev. Sci. Instrum.* **59**(12) (1988), 2544.
- [Oka80] T. Oka, *Phys. Rev. Lett.* **45** (1980), 531.
- [QKD98] E. Quandt, I. Kraemer und H. F. Doebele, *Europhys. Lett.* **45** (1998), 32.

- [Ra05] L.S. Rothman und al., *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **96** (2005), 139.
- [RMK00] J. Röpcke, L. Mechold und M. Käning, *Rev. Sci. Instrum.* **71(10)** (2000), 3706.
- [Rot95] J.R. Roth, *Industrial plasma engineering*, Institute of Physics Publishing, Bristol, Philadelphia (1995).
- [Räu98] E. Räuchle, *J. Phys. IV France* **8** (1998), PR7.
- [Sa06] E. Speth und al., *Nucl. Fusion* **46** (2006), 220.
- [Sch93] U. Schumacher, *Fusionsforschung*, Wissenschaftliche Buchgesellschaft Darmstadt, Darmstadt (1993).
- [Sch95] T. Schütte, *Laser-induzierte Fluoreszenzmessungen und Emissionsspektroskopie an ECR-Methanplasmen*, Dissertation, Universität Stuttgart, Stuttgart (1995).
- [SFAP01] P. Scheubert, U. Fantz, P. Awakowicz und H. Paulin, *J. Appl. Phys.* **90** (2001), 587.
- [SS70] J. D. Swift und M. J. R. Schwar, *Electrical Probes for Plasma Diagnostics*, Iliffe, London (1970).
- [Sta05] P. Starke, *Chemische Erosion verschiedener Kohlenstoff-Materialien durch Wasserstoff-Isotope in Niederdruckplasmen*, Dissertation, Universität Augsburg, Augsburg (2005).
- [Tho12] J. J. Thompson, *Philos. Mag.* **24** (1912), 209.
- [VCa94] B. F. Ventrudo, D. T. Cassidy und al., *J. Chem. Phys.* **100(9)** (1994).
- [Wün05] D. Wunderlich, *Berechnung von Teilchendichten für die Diagnostik an Niedertemperaturplasmen*, Shaker Verlag, Aachen (2005).
- [XRGO92] L.-W. Xu, M. Rösslein, C. M. Gabrys und T. Oka, *J. Mol. Spectrosc.* **153** (1992), 726.
- [ZZ95] P. Zalicki und R. N. Zare, *J. Chem. Phys* **102(7)** (1995), 2708.

Tabellenverzeichnis

3.1	<i>Auswahlregeln für Dipolübergänge des H_3^+ nahe des Grundzustandes nach [MO00]</i>	34
4.1	<i>Typische Plasmaparameter der Mikrowellenentladung COMET [Heg03].</i>	47
4.2	<i>Massenspektrometrisch bestimmte Anteile von H_3^+ an der gesamten Ionendichte in H_2/He-Plasmen bei Variation des H_2-Anteils. Der Gesamtdruck beträgt bei allen Mischungen ca. 14 Pa, die eingespeiste Mikrowellenleistung 2·600W.</i>	61

Abbildungsverzeichnis

2.1	<i>Am Detektor gemessene Intensität nach einer Linienabsorption [1], einer Linienabsorption an der Nachweisgrenze der Anordnung [2] und einer breitbandigen Absorption [3].</i>	11
2.2	<i>Zum Umlauf im Resonator äquivalente Mehrfachbeugung einer ebenen Welle an Blenden des Durchmessers $2a$ und des Abstandes d. Eine stationäre Feldverteilung stellt sich im Limes unendlich vieler Beugungen ein.</i>	13
2.3	<i>TEM₀₀-Intensitätsverteilung im konfokalen Resonator.</i>	15
2.4	<i>Schematische Darstellung der Modenstruktur im symmetrischen ($d \neq r$) und konfokalen Resonator ($d = r$) für rechteckige Spiegel. (Die Ordinatenachse dient nur der Darstellung. Die Höhe der Resonanzen ist aus Gründen der Übersichtlichkeit willkürlich unterschiedlich gewählt).</i>	16
2.5	<i>Ringdown-Signale (schematisch) : Resonator mit $\tau_0=20 \mu\text{s}$ und mit zusätzlicher Absorption ($\tau'=12 \mu\text{s}$, entspricht ungefähr $\alpha = 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ für $d/l_m = 1$).</i>	17
2.6	<i>Transmissionsfunktion eines Resonators in Abhängigkeit von der Länge t_p des eingestrahlten Laserpulses im Vergleich zur Umlaufzeit t_u.</i>	22
2.7	<i>Schematische Gegenüberstellung der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$, des Anregungsprofils $I(\omega)$ und des Absorptionsprofils $\alpha(\omega)$ für den Fall $\delta\alpha \gg \delta I > \Delta\omega$. Darüber: resultierendes Anregungsprofil. . .</i>	23
2.8	<i>Schematische Gegenüberstellung der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$, des Anregungsprofils $I(\omega)$ und des Absorptionsprofils $\alpha(\omega)$ für den Fall $\delta\alpha \gg \Delta\omega > \delta I$.</i>	25
2.9	<i>Schematische Gegenüberstellung der Transmissionsfunktion $\Gamma(\omega)$, des Anregungsprofils $I(\omega)$ und des Absorptionsprofils $\alpha(\omega)$ für den Fall $\delta I > \Delta\omega > \delta\alpha$ (oben) und $\delta\alpha \approx \delta I > \Delta\omega$ (unten).</i>	26
2.10	<i>Mögliche Realisierung einer cw-CRDS und einer gepulsten CRDS (schematisch).</i>	27
3.1	<i>Schwingungseigenmoden ν_1 und ν_2 des H_3^+-Ions [McN95].</i>	33
3.2	<i>Potentielle Energie des H_3^+ in Abhängigkeit des Winkels θ und Energieminima für die Anregungen $\nu_1\nu_1 + \nu_2\nu_2$.</i>	35
3.3	<i>Verhältnis der Zustandssumme des H_3^+-Moleküls zum Boltzmannfaktor des Zustands $(\nu_1, \nu_2, J, G)=(0, 0, 3, 3)$ für verschiedene Rotations- und Vibrationstemperaturen.</i>	38

3.4	<i>Photodetachment-Querschnitt des H^- als Funktion der eingestrahelten Wellenlänge. Bei der Grundfrequenz eines Nd:YAG-Lasers ($1.064 \mu\text{m}$) beträgt dieser $3.5 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$.</i>	40
3.5	<i>Aufbau und U/I-Kennlinie einer Langmuir-Sonde (schematisch).</i>	42
3.6	<i>Grundlegende Bilanzen innerhalb eines Stoß-Strahlungs-Modells.</i>	45
4.1	<i>Aufbauschema der Mikrowellenentladung COMET. In radialer Ansicht (links) und axialer Ansicht (rechts). Die axiale Ansicht zeigt den Aufbau für die Verwendung mit CRDS und den verwendeten Sichtstrahl. Die radiale Ansicht zeigt die Konfiguration für emissionsspektroskopische Untersuchungen. Der Ort des Sichtstrahls für die CRDS ist hier angedeutet.</i>	47
4.2	<i>Oben: Aufbau der CRDS am Experiment COMET. Versorgungsgeräte sowie die Triggerlogik sind nicht dargestellt (siehe dazu Abschnitt 4.2.2). Vergrößerung unten: Anordnung zur Schaltung des anregenden Lasers mit Hilfe des AOM (Winkel aus Gründen der Darstellung übertrieben).</i>	49
4.3	<i>Blockdiagramm der CRDS-Anlage an COMET. Plasmagefäß und Resonator sind nicht eingezeichnet.</i>	53
4.4	<i>CRDS-Messsoftware CRIMES während einer Leermessung des Resonators. Das dargestellte Signal entspricht einer intrinsischen Abklingzeit von ungefähr $21 \mu\text{s}$. Man erkennt das Schalten des Modulators ungefähr $5 \mu\text{s}$ nach Beginn der Datenerfassung, danach beginnt der Ringdown-Vorgang.</i>	54
4.5	<i>Ausschnitt aus dem Absorptionsspektrum des Wassermoleküls gemäß der Datenbasis HITRAN04 (oben) und gemessenes Ringdown-Spektrum (unten) bei einem Fülldruck von ca. 30 Pa.</i>	58
4.6	<i>Wellenlängenkalibrierung des Scanbereichs um 1468.62 nm Wellenlänge an Luft mit Hilfe des Gitterspektrometers. Der eingezeichnete lineare Fit entspricht der Funktion $\lambda(U) = 1468.002 \text{ nm} + 0.0086 \text{ nm/V} \cdot U$.</i>	60
4.7	<i>Absorptionssignal des H_3^+-Moleküls in der Mikrowellenentladung COMET. Die Halbwertsbreite der Linie beträgt ca. 14.5 pm, die Linienfläche ist $\tilde{\alpha} = 7.6 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \text{ nm}$.</i>	63
4.8	<i>Aus dem Signal aus Abb. 4.7 ermittelte Dichte des H_3^+ für verschiedene Vibrationstemperaturen bei $T_{\text{rot}} = 600 \text{ K}$.</i>	64
5.1	<i>Plasmaquelle am Experiment BATMAN. Der Sichtstrahl der CRDS ist angedeutet.</i>	68
5.2	<i>Anordnung der Komponenten und Strahlführung der CRDS an BATMAN (links, Seitenansicht) und Sichtstrahl im Bereich der Quelle (rechts, Draufsicht).</i>	72
5.3	<i>Blockdiagramm der CRDS-Anlage an BATMAN. Der Messresonator und die Plasmaquelle sind nicht eingezeichnet.</i>	73

5.4	<i>Bildschirmkopie des Messprogrammes CRIMES Pulsed.</i>	74
5.5	<i>Ringdown-Signale im leeren Resonator (oben) und während einer Plasmaentladung (unten, gemitteltes und ungemitteltes Signal). Die Differenz der Abklingkonstanten entspricht einer mittleren H^--Dichte entlang des Sichtstrahls von $5.5 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$.</i>	75
5.6	<i>Oben: Zeitaufgelöste H^--Dichte in BATMAN während Entladungen in einer cäsiumfreien Quelle (oben), sowie eine Entladung mit Argon als Arbeitsgas. Unten: Zeitaufgelöster Absorptionskoeffizient bei hohem Cäsiuminventar, einmal mit Wasserstoff und einmal mit Helium als Arbeitsgas.</i>	76
5.7	<i>Oben: Sichtstrahlgemittelte Dichte negativer Wasserstoffionen (geschlossene Symbole) und extrahierte Stromdichte (offene Symbole, $U_{\text{Extr}} = 9.2 \text{ kV}$) bei Variation von Druck und Leistung. Unten: Sichtstrahlgemittelte Dichte negativer Deuteriumionen bei Variation von Druck und Leistung. In beiden Fällen wurde zur Steigerung der Ausbeute Cäsium in die Quelle verdampft.</i>	78
5.8	<i>Oben: H^--Dichte und extrahierter Ionenstrom während der Quellenkonditionierung mit Cäsium. Unten: Leistungsreihe vor und nach Abschluss des Konditionierungsvorganges.</i>	80
5.9	<i>Oben: Sichtstrahlgemittelte Dichte negativer Wasserstoffionen ($d=3 \text{ cm}$) sowie die extrahierte Stromdichte negativer Ionen bei Variation der Gittervorspannung (oben). Unten: Biasstrom auf das Plasmagitter, extrahierte Stromdichte von Elektronen (skaliert) und negativen Ionen.</i>	82

Mein Dank gilt an dieser Stelle allen, die zur erfolgreichen Fertigstellung dieser Arbeit beigetragen haben. Im Einzelnen sind dies :

- **Herr Prof. Dr.–Ing. Kurt Behringer** für seine Unterstützung und die anregenden Diskussionen, sowie für die Aufnahme als Doktorand am Max–Planck–Institut für Plasmaphysik in Garching.
- **Herr Prof. Dr. Jochen Mannhart** für die Übernahme der Zweitberichtes.
- **Frau PD Dr.–Ing. Ursel Fantz** für das angenehme Arbeitsklima, die hervorragende Zusammenarbeit, sowie für ihre unermüdliche und zuverlässige Unterstützung in wissenschaftlichen wie in organisatorischen Fragen.
- Am Lehrstuhl für experimentelle Plasmaphysik der Universität Augsburg **Herr Dr. Patrick Starke, Herr Dr. Dirk Wunderlich, Herr Dipl.–Phys. Stephan Dietrich, Herr Dipl.–Phys. Markus Regler, Herr Stefan Riegg, Herr Raphael Gutser** sowie **Frau Susanne Hilbert** für ihre Hilfe und Unterstützung in vielen praktischen und theoretischen Fragen. Mein Dank gilt außerdem den Mitarbeitern der Werkstätten des Instituts für ihre tatkräftige Unterstützung und Hilfsbereitschaft.
- Am Max–Planck–Institut für Plasmaphysik in Garching **Herr Dr. E. Speth, Herr Dr. H.–D. Falter, Herr Dr. Peter Franzen, Herr Dr. Werner Kraus, Herr Dr. Stephan Leyer, Herr Dipl.–Ing. Rudolf Riedl, Herr Dipl.–Ing. Markus Fröschle, Herr P. Pollner, Herr F. Fackert, Herr S. Obermayer** sowie den weiteren Mitarbeitern des Bereiches Technologie für ihre Hilfe bei Aufbau und Durchführung der Experimente in Garching.
Mein besonderer Dank gilt außerdem **Frau Dipl.–Ing. Sina Christ–Koch** für die hervorragende Zusammenarbeit beim Aufbau der Laserdiagnostiken am Experiment BATMAN.
- **Herr Prof. Dr. Benjamin J. McCall** als unerschöpfliche Informationsquelle zum H_3^+ –Molekül.
- **Herr Dipl.–Phys. Daniel Halmer** für die Überlassung seines Programmcodes zum schnellen exponentiellen Fit von Ringdown-Signalen.

Lebenslauf

Name: Markus Berger

Geboren: 22.6.1974 in Neusäß, Bayern

Familienstand: ledig

1981–1986 : Besuch der Grundschule in Neusäß und Neusäß-Steppach

1986–1995 : Besuch des Gymnasiums bei St.Stephan in Augsburg

Juni 1995 : Allgemeine Hochschulreife

1995–1996 : Ableistung des Zivildienstes

1996–2003 : Studium der Physik an der Universität Augsburg

Juli 2003 : Diplom im Studiengang Physik

2003–2006 : Doktorand am Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching
(Dienstort: Universität Augsburg)